

UNIVERSITÉ DE PARIS

FACULTÉ DE PHARMACIE

Année 1922-1923.

N° 5.

LES PLANTES A THYMOL

—

THÈSE

Pour l'obtention du diplôme de Docteur de l'Université de Paris

(PHARMACIE)

Présentée et soutenue le mars 1923

PAR

BLAQUE Georges

PHARMACIEN DE PREMIÈRE CLASSE

LICENCIÉ ÈS-SCIENCES NATURELLES

LAURÉAT DE LA FACULTÉ DE PHARMACIE DE PARIS

ANCIEN PRÉPARATEUR A LA FACULTÉ DE PHARMACIE DE PARIS.

JURY { MM. PERROT, Président.
DELEPINE, Professeur.
GUÉRIN, Agrégé.

LONS-LE-SAUNIER

IMPRIMERIE ET LITHOGRAPHIE LUCIEN DECLUME

—
1923



Digitized by the Internet Archive
in 2026

UNIVERSITÉ DE PARIS

FACULTÉ DE PHARMACIE

Année 1922-1923.

N° 5.

LES PLANTES A THYMOL



THÈSE

Pour l'obtention du diplôme de Docteur de l'Université de Paris

(PHARMACIE)

Présentée et soutenue le mars 1923

PAR

BLAQUE Georges

PHARMACIEN DE PREMIÈRE CLASSE

LICENCIÉ ÈS-SCIENCES NATURELLES

LAURÉAT DE LA FACULTÉ DE PHARMACIE DE PARIS

ANCIEN PRÉPARATEUR A LA FACULTÉ DE PHARMACIE DE PARIS.

JURY { MM. PERROT, Président.
DELEPINE, Professeur.
GUÉRIN, Agrégé.



LONS-LE-SAUNIER

IMPRIMERIE ET LITHOGRAPHIE LUCIEN DECLUME

1923

PERSONNEL DE LA FACULTÉ DE PHARMACIE

ADMINISTRATION

MM. RADAIS, Doyen, *, I.
 PERROT, Assesseur, O. *, I.
 G. DURSANT, Secrétaire, *, I.

PROFESSEURS

MM. GUIGNARD, Membre de l'Institut, C. *, I. Botanique générale.
 VILLIERS, *, I. Chimie analytique.
 H. GAUTHIER, O. *, I. Chimie minérale.
 RADAIS, *, I. Cryptogamie et Microbiologie.
 BÉHAL, Membre de l'Institut, C. *, I. Chimie organique.
 PERROT, O. *, I. Histoire Naturelle des Médicaments.
 COUTIÈRE, *, I. Zoologie.
 BERTHELOT, Membre de l'Institut, I. Physique.
 GRIMBERT, *, I. Chimie biologique.
 LEBEAU, O. *, I. Pharmacie chimique.
 DELÉPINE, *, I. Hydrologie et Hygiène.
 GUERBET, O. *, I. Toxicologie.
 BOUGAULT, I. Pharmacie galénique.

Doyens honoraires : MM. GUIGNARD, C. *, I. et H. GAUTHIER, O. *, I.
 Professeur honoraire : M. MOUREU, C. *, I.

CHARGÉS DE COURS

MM. TASSILLY, *, I. Minéralogie.
 MARC HONNORAT, *, I. Législation et Déontologie pharmaceutiques.
 LUTZ, I. Cryptogamie.

AGRÉGÉS EN EXERCICE

MM. SOMMELET, I.	MM. GUÉRIN, I.	MM. GORIS, *, I.
DAMIENS, A.	LUTZ, I.	LAUNOY, *, A.
TASSILLY, *, I.		HÉRISSEY, *, I.

CHEFS DES TRAVAUX PRATIQUES

MM. DEFACQZ, *, I. Chimie générale.
 COUSIN, I. Chimie analytique.
 SOUÈGES, I. Micrographie.
 LEROUX, I. Physique.
 DEVAL, I. Microbiologie.
 FRANÇOIS, *, I. Travaux généraux de 4^e année

Bibliothécaire en Chef : M. BARRAU-DIHIGO, I.



A MES PARENTS.

INTRODUCTION.

Suivant en cela l'exemple de bon nombre de produits, le Thymol est devenu très rare et partant d'un prix très élevé dans les dernières années de la grande guerre. Si l'on consulte les cours pratiqués à Londres pour cet article, de 1914 à 1918, on voit qu'ils sont passés de 7 shillings 6 pence la livre anglaise de 453 grammes, à 45 shillings, le maximum ayant été atteint en juillet 1917 avec le cours de 47 shillings. En l'espace de quatre ans, les prix avaient donc augmenté de près de 7 fois leur valeur : c'est dire que le Thymol était devenu de moins en moins facile à trouver sur le marché. La raison de cette rareté était malheureusement la même que pour celle qui existait, à pareille époque, chez tant de produits chimiques. Là encore l'Allemagne était le principal fabricant ; c'était elle qui fournissait la majeure partie du Thymol consommé dans le monde : on comprend donc que ce produit se soit raréfié sur nos marchés, du jour où, du fait de la guerre, toutes relations commerciales cessèrent avec les Empires Centraux.

Pour parer à cette crise, des efforts furent alors entrepris dans plusieurs pays, d'une part en vue de rechercher des sources naturelles de thymol et de les développer par la culture, et de l'autre pour arriver à préparer celui-ci sur une échelle industrielle. Même on s'est préoccupé, en Angleterre et en Amérique, de voir s'il ne serait pas possible de substituer au Thymol, dans certaines de ses applications, son isomère : le carvacrol. Ce sont les Anglais qui, les premiers, ont abordé l'étude de ces problèmes : il semble même qu'ils y aient mis un certain point d'honneur et qu'ils se soient piqués au jeu. C'est qu'en effet, bien que cela puisse paraître paradoxal, le Thymol que l'Allemagne vendait à l'Angleterre était exclusivement fabriqué avec de l'essence d'Ajowan de provenance indienne, la presque totalité des fruits d'Ajowan récoltés aux Indes étant avant guerre

exportés sur Hambourg. Il était donc naturel que, disposant de la matière première, l'Angleterre tentât d'en retirer le Thymol. Aussi l'admirable et puissant organisme qu'est l'*Imperial Institute* de Londres, après avoir attiré l'attention des industriels anglais sur l'intérêt de la question, les mit-il aussitôt en rapport avec les maisons d'exportations de l'Inde susceptibles de leur fournir des graines d'Ajowan. Bien plus, les chimistes de l'*Imperial Institute* ont étudié un procédé pratique de préparation du Thymol afin de favoriser la fabrication de ce produit. Et, alors que leurs premiers essais ne leur permettaient pas d'obtenir de beaux et gros cristaux analogues à ceux fournis par les fabricants allemands, on confia au *Scientific and technical Research Department* le soin de mettre sur pied une méthode propre à transformer les cristaux opaques de Thymol en cristaux transparents.

A la suite de cette action, ainsi entreprise sur l'initiative de l'*Imperial Institute*, le Thymol est maintenant fabriqué en Angleterre par plusieurs maisons qui fournissent un produit d'aussi bonne qualité et d'aussi bel aspect que celui qui provenait d'Allemagne. Sur les 966 kilos de Thymol que nous avons achetés au cours de l'année 1921 à l'étranger, plus de 350 nous ont été vendus par l'Angleterre.

Aux Etats-Unis d'Amérique, les expériences de culture et de sélection entreprises depuis 1907 sur *Monarda punctata*, plante herbacée à essence riche en Thymol, ont pris un développement considérable sur l'intervention du *Bureau of Plant Industry*, de Washington, autre grand organisme de recherches. Le Département d'Agriculture des Etats-Unis dans son Bulletin n° 372, a même publié en 1916, sous la signature de M. Hood, une monographie très détaillée sur la production du Thymol à l'aide de *Monarda punctata*.

Au Japon, on cultive, depuis plusieurs années, le *Mosla japonica* Maxim., en vue de l'extraction du Thymol de cette Labiée.

L'Espagne, elle aussi, est devenue depuis quelques années gros producteur de Thymol. On savait que certaines des essences provenant des thyms récoltés dans le sud de la péninsule étaient particulièrement riches en Thymol. Des usines se sont montées pour extraire ce produit, notamment à Barcelone, et c'est ainsi que nous avons pu acheter, l'an dernier, en Espagne, 610 kilos de Thymol.

Enfin, en Italie, on a envisagé récemment l'exploitation du *Thymus capitatus*, extrêmement abondant en Sicile et dont l'essence renferme jusqu'à 80 % de carvacrol.

Mais si, un peu partout, on s'est ainsi efforcé d'arriver, non sans succès, à fabriquer du Thymol, par contre, on ne semble pas, en France, s'en être autrement préoccupé. Et cependant nous sommes, pour ce produit, presque entièrement tributaires de l'étranger, car les quantités fabriquées chez nous par quelques rares industriels sont pratiquement insignifiantes. Les statistiques douanières nous le prouvent d'ailleurs surabondamment. Bien plus, l'Allemagne, qui a repris ses exportations d'avant guerre, nous a fourni près de 1.500 kilos pendant l'année 1922.

En prenant la présidence du *Comité Interministériel des plantes médicinales et à essences*, M. le Professeur PERROT a pensé que, parmi les questions dont il convenait d'entreprendre l'étude, devait figurer celle des plantes à Thymol.

Il est impossible, à son avis, que la France ou ses Colonies, grâce à la richesse de leur flore et à la variété de leur climat ne puissent produire de plantes susceptibles de fournir du Thymol. Et c'est pour aborder cette étude, plus complexe qu'on ne saurait se l'imaginer, qu'il nous a chargé de faire une première enquête sur les principales plantes à Thymol, en insistant sur celles qui sont capables d'être récoltées sur notre sol ou sur celui de notre domaine colonial.

Evidemment, à l'origine de cette enquête, on est tenté de répondre immédiatement qu'il existe en France une plante à Thymol, extrêmement répandue et qu'il n'y a qu'à l'utiliser. Le Thym vulgaire, *Thymus vulgaris*, ne couvre-t-il pas, dans certaines garrigues du Midi, des espaces immenses tout comme le fait la Lavande dans nos régions subalpines ? Or, ce thym est assez riche en Thymol ; son essence en contient habituellement de 25 à 30 % : pourquoi ne pas l'utiliser ? En période anormale, en tablant sur des prix très élevés du Thymol, on pourrait peut être tenter l'opération avec chance de bénéfice. Mais aujourd'hui que le Thymol vaut environ 125 francs le kilo et l'essence de Thym 32 francs, on voit que l'industrie ne tirerait pratiquement aucun profit en se servant du *Thymus vulgaris* comme source de Thymol.

Il faut donc chercher d'autres espèces plus riches en Thymol

ou dont l'essence ait une valeur moindre que celle de cette dernière. C'est ce que nous nous sommes proposés dans le présent travail où nos efforts personnels ont plus spécialement porté sur l'étude de différentes espèces bien définies au double point de vue botanique et de leur teneur en Thymol, ce qui nous a amené à mettre sur pied un procédé pratique de dosage du Thymol dans les essences.

Toutefois, avant d'aborder l'étude de ces espèces, nous avons cru bon de donner quelques indications générales sur le Thymol et notamment sur sa préparation et son dosage.

Qu'il nous soit permis, auparavant, de remercier très cordialement tous ceux qui, à des titres divers, nous ont facilité notre tâche, en particulier MM. A. ALLAND, de Paris, FERRAND, CHARABOT et Cie, de Grasse, M. COMBET, Ingénieur-Chimiste et Mme ALLORGE-GATIN, Docteur ès-Sciences ; nous les prions de bien vouloir trouver ici l'expression de notre vive gratitude.

A mon maître, M. le Professeur PERROT, je dédie ce travail qu'il m'a suggéré, en témoignage de mon affectueuse reconnaissance.

PLAN DU TRAVAIL.

INTRODUCTION.

CHAPITRE I.— Préparation du Thymol.

Examen critique des procédés actuellement employés.

1° Préparation à l'aide des essences de certaines plantes.

2° Préparation par voie de synthèse.

CHAPITRE II.— Dosage du Thymol dans les essences.

a) Examen critique des procédés actuellement employés.

b) Procédé de dosage des essences à thymol donnant :

1° La proportion de phénols totaux exprimés en thymol;

2° La teneur en thymol cristallisable.

CHAPITRE III.— Etude monographique des plantes à Thymol.

Ajowan.

Thymus Zygis L.

Ocimum gratissimum L.

Ocimum viride Willd.

Mosla japonica Maxim.

Monarda punctata L.

Thymus Broussonnetii Boiss.

Thymus capitatus Hoffm. et Link.

Autres plantes à Thymol.

Tableau comparatif des rendements en essence et de la richesse en phénols des principales espèces à thymol.

CONCLUSIONS.

LES PLANTES A THYMOL.

CHAPITRE PREMIER.

Préparation du Thymol.

Examen critique des procédés actuellement employés.

1^o Préparation à l'aide des essences de certaines plantes.

Un grand nombre de plantes fournissent à la distillation des huiles essentielles dans lesquelles existe le thymol. Celui-ci est parfois si abondant qu'il commence à se séparer à la température ordinaire des essences qui le renferment ; c'est le cas notamment des essences d'Ajowan (*Carum copticum*), de *Thymus Zygis* et d'*Ocimum gratissimum*. Aussi la préparation industrielle du thymol consiste-t-elle dans l'extraction de celui-ci, des huiles essentielles qui en contiennent un pourcentage élevé. Cette extraction repose sur la propriété qu'a le thymol de donner avec les alcalis caustiques des combinaisons solubles dans l'eau, qui, traitées par un acide, régénèrent le thymol. C'est ainsi, par exemple, qu'on prépare ce dernier à l'aide des graines d'Ajowan (1).

Les graines d'Ajowan préalablement concassées et introduites dans un panier métallique, disposé dans la cucurbitte d'un alambic, sont distillées à l'aide de la vapeur ; elles fournissent en général de 3 à 4 % d'huile essentielle. Celle-ci, pour convenir à la préparation du thymol, doit être de distillation récente, claire et à peine

(1) *Bull. of Imp. Institute*, vol. XII, 1914, p. 599.

colorée. On ajoute à cette huile un volume égal d'une solution aqueuse, chaude, de soude caustique et on agite fortement. Le thymol entre en combinaison avec la soude et reste dans la partie aqueuse, qui se sépare bientôt de la couche huileuse après quelques instants de repos. On sépare alors la partie aqueuse, à l'aide d'une ampoule, ou d'un entonnoir à décantation ordinaire, de la partie huileuse et cette dernière est à nouveau traitée par la soude. La même opération est répétée plusieurs fois jusqu'à ce qu'il n'y ait plus trace de thymol dans la portion huileuse (1). Finalement on réunit ensemble toutes les parties aqueuses, qu'on laisse déposer et qu'on filtre. Le filtrat est alors acidifié par un excès d'acide chlorhydrique : le thymol se précipite et vient surnager à la surface sous forme d'une couche huileuse. On décante la partie aqueuse acide et on la remplace par de l'eau distillée chaude. On agite fortement de façon à éliminer du thymol toute trace d'acide. Les eaux de lavage sont ensuite soigneusement décantées et la partie huileuse, chaude, est versée dans un cristalliseur, où l'on jette un fragment de thymol pour amorcer la cristallisation. La masse huileuse se solidifie presque aussitôt : on l'essore et on recueille finalement le thymol cristallisé.

Le résidu huileux, qui représente environ 50 % de l'huile essentielle utilisée pour la fabrication, est vendu sous le nom de *thymène* et sert généralement à parfumer les savons bon marché.

Une méthode de préparation un peu plus compliquée, mais qui permet d'obtenir des rendements en thymol plus élevés, est celle qui est employée aux Etats-Unis, lorsqu'on utilise l'essence de *Monarda punctata* comme matière première. Cette essence renferme de 75 à 80 % de phénols, presque entièrement composés de thymol, les 30 à 20 % restant étant constitués, en grande partie, par du cymène. Or ce carbure benzénique agit un peu comme dissolvant du thymol et par conséquent empêche sa complète cristallisation. Il est donc nécessaire d'éliminer le cymène avant de procéder à l'extraction du thymol (2). Cette élimination repose sur la différence qui existe entre les points d'ébullition des deux corps : à la pression normale, le thymol bout à 232° C., tandis que le cymène bout à 175°-176° C. ; la distillation fractionnée peut donc permettre une séparation presque complète du thymol et du

(1) Ce qu'on peut constater en ajoutant, à une petite prise d'essai, un demi volume d'acide acétique et un volume d'acide sulfurique ; il se produit une coloration rouge-violettes tant qu'il existe du thymol dans la partie huileuse.

(2) HOOD (S. C.) Commercial production of thymol from Horsemint (*Monarda punctata*). Bull. n° 372, U. S. Department of agriculture, 1916.

cymène. Cette séparation s'opère de la façon suivante : on distille l'huile essentielle brute dans une cornue de cuivre à laquelle est adaptée une colonne à fractionnement. La distillation est conduite lentement et on met de côté la partie d'essence passant au-dessous de 215° C. On élève alors légèrement la température et on recueille la fraction distillant entre 215° et 240° C. Le résidu de la cornue forme une masse épaisse, goudronneuse, et, autant qu'on sache, sans valeur. Pratiquement, tout le thymol se trouve dans la seconde portion qui consiste en un liquide légèrement jaunâtre. Toutefois, comme la partie ayant distillé au-dessous de 215° C. peut contenir une certaine quantité de thymol, surtout si l'opération n'a pas été très bien conduite, on pratique sur elle un nouveau fractionnement, analogue au précédent. Finalement, la portion ayant distillé entre 215° et 240° C. est jointe à celle qui avait été recueillie précédemment dans les mêmes conditions.

La totalité des portions ayant distillé entre 215° et 240° C. est mise à refroidir dans un cristalliseur ; on y jette un fragment de thymol pour amorcer la cristallisation, qui se produit en quelques minutes. Après avoir laissé au repos pendant la nuit, on sépare les cristaux de la liqueur mère par centrifugation. On les lave à l'eau, tandis que le centrifugeur tourne à pleine vitesse, et on les sèche en continuant à faire fonctionner ce dernier pendant 3 à 5 minutes.

En refroidissant la liqueur mère dans un mélange réfrigérant, ou simplement en la plaçant dans un endroit frais, on peut recueillir une nouvelle quantité de cristaux. Toutefois si cette liqueur-mère se trouve en trop grande quantité, on doit en déduire qu'une proportion élevée de liquide bouillant au-dessous de 215° C. n'a pas été éliminée. On doit alors la redistiller à nouveau, de la manière indiquée précédemment, et les parties passant entre 215° et 240° C., devront être traitées comme il a été dit plus haut.

En opérant dans ces conditions, on arrive à obtenir un produit parfaitement cristallisé et très blanc. De plus, le rendement est très satisfaisant. Un échantillon d'huile essentielle de *Monarda punctata* pesant 12 kgs. 684, et ayant donné au dosage une teneur en phénol de 72 %, a fourni exactement 8 kgs. 454 de thymol, soit un rendement commercial de 63,3 %.

Avec le procédé qui vient d'être décrit, il subsiste après l'extraction du thymol, trois sortes de résidus, à vrai dire, en petite quantité : 1° la portion bouillant au-dessous de 215° C. et qui est principalement constituée par du cymène ; 2° la liqueur-mère résultant de la cristallisation finale du thymol ; 3° et enfin la matière goudronneuse restant dans la cornue après la dernière distillation.

Il serait intéressant de rechercher s'il ne serait pas possible d'utiliser ces sous produits.

Enfin, il convient de signaler un troisième mode d'extraction du thymol au départ des graines d'Ajowan et qui a été récemment indiqué par LAKHANI (J. V.), SUDBOROUGH (J. J.) et WATSON (H. E.) (1). Il n'est d'ailleurs, en somme, qu'une combinaison des deux procédés précédents.

Les semences d'Ajowan sont soumises à la distillation à la vapeur. Les premières fractions d'essence qui distillent renferment la majorité des sous-produits et sont traitées par une solution de soude pour en extraire le thymol. Quant aux dernières fractions, il est possible d'en obtenir immédiatement du thymol par simple cristallisation ; la liqueur-mère est additionnée de lessive de soude et réunie aux premières fractions qui ont été traitées de même. Ces liqueurs sont acidifiées et le thymol brut ainsi obtenu est purifié par distillation à la vapeur vers 130° C. Le distillat, qui est incolore, est agité pendant qu'il refroidit. On obtient alors de petits cristaux que l'on essore et que l'on fait fondre à nouveau. Le liquide obtenu est alors refroidi lentement, sans aucune agitation. Finalement, on obtient de gros cristaux, transparents, dans la proportion d'environ 1 % des graines employées.

2° Préparation par voie de synthèse.

Le thymol a été préparé synthétiquement pour la première fois par WIDMAN, en 1882. Dans le procédé indiqué par cet auteur, on part de l'aldéhyde cuminique que l'on nitre ; puis l'on traite le composé nitré formé par le pentachlorure de phosphore. Ce dérivé nitrochloré ainsi obtenu est réduit à froid par le zinc et l'acide chlorhydrique, en solution alcoolique, et donne la cymidine ou 3-aminocymène. Celle-ci, par diazotation à l'aide de l'acide azoteux, en solution sulfurique, fournit le thymol.

En 1900, DINESMAN prend un brevet dans lequel il décrit un moyen de préparer le thymol à l'aide du 2-bromo-p-cymène. Par sulfonation de ce corps, puis chauffage à l'autoclave à 170° avec de la poudre de zinc et de l'ammoniaque, on obtient le cymène-3-acide sulfonique qui, fondu avec de la potasse, donne le thymol.

En 1908, BÉHAL et TIEFFENAU ont réalisé une synthèse du thymol en partant de l'acide métacrésotinique (2).

Enfin, au cours de ces dernières années plusieurs brevets ont été pris aux États-Unis concernant le même objet : l'un, en 1919,

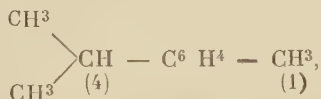
(1) *Journ. Ind. Inst. Sci.*, 1921, 4, p. 59.

(2) Voir BÉHAL (A.) et VALEUR (A.). — *Traité de Chimie organique*, II, p. 147.

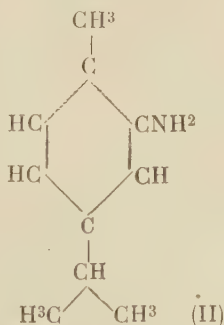
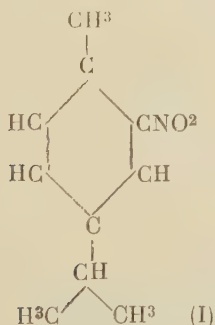
par ANDREW qui part de la cymidine ; un second, en mai 1921, par Robert M. COLE, qui se propose de produire de grosses quantités de thymol, à des prix comparativement peu élevés, par la réduction électrolytique du nitrocymène en présence de l'acide sulfurique (1) ; et enfin, un tout récent par Max PHILLIPS, d'Evansville (Wisconsin).

Le procédé de M. PHILLIPS permet de préparer le thymol en partant du para-cymène (4-méthyl-4-isopropylbenzène). Il est résumé ainsi dans le brevet pris par l'auteur : *procédé de préparation du thymol par traitement du paracymène par un mélange nitrant, réduction du composé nitré en cymidine, sulfonation de la cymidine, élimination du reste du groupement aminé et fusion du composé sulfoné avec de la soude.*

La première phase du procédé consiste à transformer le paracymène :

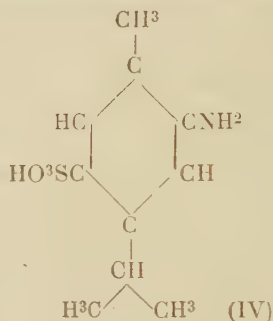
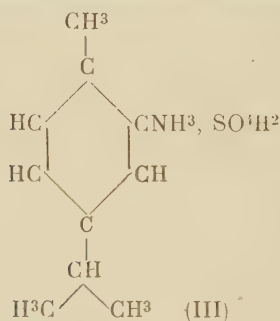


en aminocymène ou cymidine, de la façon suivante. On ajoute lentement du paracymène pur, à un poids égal d'acide sulfurique, de poids spécifique 1,84, maintenu à une température égale ou inférieure à 0°. Puis on ajoute lentement le mélange sulfonitrique, préalablement refroidi, composé de 1 partie d'acide nitrique (d = 1,42) et de deux parties d'acide sulfurique (d = 1,84). Pendant toute la durée de la nitration on agite le mélange, tandis que la température est maintenue légèrement au-dessous de 0°. Quand toute la solution sulfonitrique a été versée, on continue l'agitation pendant plus d'une heure. Finalement le mélange est versé dans de l'eau froide, et on recueille la couche huileuse qui surnage. Celle-ci est lavée plusieurs fois avec de l'eau, puis avec une solution de carbonate de soude, et à nouveau avec de l'eau. On a ainsi obtenu le nitro-

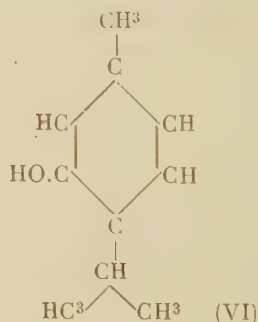
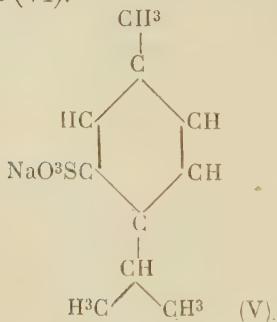


(1) *Perfumery and essential oil record*, août 1921, n° 8, p. 281.

cymène (I). Celui-ci est alors transformé en aminocymène (II) par réduction à l'aide de l'acide chlorhydrique et du fer, c'est-à-dire suivant le procédé utilisé dans la préparation industrielle de l'aniline au départ du nitrobenzène. L'aminocymène est ensuite sulfoné, en ajoutant lentement à 100 parties en poids, 69 parties d'acide sulfurique ($d = 1,84$). La masse cristallisée alors obtenue, et qui est constituée par du sulfate de cymidine (III), est alors transformée en acide aminocymène-sulfonique (IV) par un chauffage approprié analogue à celui qui est employé dans la préparation de l'acide sulfanilique à l'aide du sulfate d'aniline. L'acide aminocymène-sulfonique est alors diazoté, en le traitant par le nitrite de



soude en solution acide. Puis, le dérivé diazoïque obtenu est réduit soit au moyen du chlorure stanneux en solution alcaline, soit au moyen de l'acide formique et de la poudre de cuivre, soit par tout autre mode de réduction. On obtient ainsi l'acide cymène-sulfonique dont le sel de sodium (V) est fondu avec de la soude. Dans cette dernière opération, le groupement oxhydryle se substitue au groupement SO^3Na , de sorte qu'on arrive finalement au thymol (VI).



On sépare le thymol en dissolvant le produit obtenu dans de l'eau, puis en acidulant avec de l'acide sulfurique dilué et enfin par entraînement à la vapeur d'eau.

CHAPITRE II.

Dosage du Thymol dans les essences.

A. — Examen critique des procédés actuellement employés.

Un des facteurs principaux de l'appréciation des essences de Thym, est leur teneur en phénols. Pour déterminer cette dernière, on emploie, d'une façon presque générale, le procédé indiqué par GILDEMEISTER (1) et qui repose sur la propriété qu'ont les phénols de donner, avec les alcalis, des combinaisons solubles. Le dosage s'effectue de la manière suivante, à l'aide d'un ballon dit à aldéhyde cinnamique (2). Celui-ci, d'environ 100 cc. de capacité, est muni d'un col de 8 mm. de diamètre intérieur, et de 13 cm. environ de longueur ; ce col est divisé en $\frac{1}{10}$ de centimètres cubes et peut contenir un peu plus de 6 centimètres cubes. Le 0 de l'échelle se trouve légèrement au-dessus de l'étranglement du ballon.

« On introduit, dans ce ballon, 10 cc. de l'essence à essayer
« et on ajoute de la lessive de soude à 3 ou 5 %, en quantité telle
« que le petit ballon soit rempli aux quatre cinquièmes. Le
« mélange est ensuite agité fortement et à plusieurs reprises. Par
« une nouvelle addition de lessive alcaline, on amène dans le col
« gradué la partie huileuse non entrée en réaction ; afin de déta-
« cher le mieux possible les gouttelettes d'essence restant adhé-
« rentes aux parois du ballon, on tapote celui-ci tout en lui impri-
« mant des mouvements de rotation. Lorsque toute la partie non
« phénolique s'est rassemblée au-dessus de la lessive, ce qui
« demande plusieurs heures, on lit exactement son volume sur la
« graduation. En retranchant de 10 le chiffre ainsi déterminé, on a
« la proportion d'essence entrée en solution, et en multipliant

(1) GILDEMEISTER et HOFFMANN, 2^e édition, traduction française, t. I, p. 638.

(2) ou encore : à *cannelle de Chine*, ainsi appelé en raison de son utilisation spéciale pour le dosage de l'aldéhyde cinnamique dans les essences de cannelle.

le, est extrêmement fréquent. Si l'on veut attendre de cette méthode une exactitude certaine en ce qui concerne la richesse en thymol seul, il semble donc indispensable de séparer préalablement celui-ci du carvacrol.

Or, cette séparation n'est pas toujours aisée, car les deux isomères ont bon nombre de propriétés physiques communes ; leurs températures d'ébullition, qui auraient pu permettre de les séparer par distillation fractionnée, sont presque identiques ; le thymol bout en effet à 232° , tandis que le carvacrol bout vers 235° - 237° à la pression normale. GILDEMEISTER a bien indiqué que le carvacrol pouvait être retiré intégralement de sa solution alcaline au moyen de l'éther par agitation, alors que, selon DORRONSORO, le thymolate de soude résistait à cette extraction. Mais les nombreux essais que nous avons effectués ne nous ont pas permis de vérifier ces faits. Tout au contraire, nous avons constaté que le carvacrolate de soude n'est pas intégralement soluble dans l'éther et, en outre, que le thymolate de soude y est légèrement soluble.

Nous en concluons, que lorsqu'on est en présence d'une huile essentielle renfermant à la fois du thymol et du carvacrol, il est impossible de séparer ces deux corps l'un de l'autre, en se servant de la différence de solubilité dans l'éther de leur combinaison sodée.

Jusqu'à présent, le procédé le plus efficace permettant de séparer le thymol du carvacrol est basé sur la différence existant entre les points de fusion de ces deux corps. A la température ordinaire, le thymol est solide, tandis que le carvacrol est liquide. Ce dernier se solidifie à $+0^{\circ},5$, alors que le thymol fond à $+50^{\circ}$ - 51° . De sorte, que dans une essence renfermant à la fois les deux isomères, on pourra obtenir leur séparation en faisant cristalliser le thymol qu'elle contient. C'est en s'appuyant sur cette donnée que MASTBAUM, d'une part, Tatsuo KARIYONE et Kenjiro ATSUMI, de l'autre ont indiqué, presque à la même époque, un procédé de dosage du thymol. Mais, alors que le premier détermine la proportion de thymol contenu dans une essence par pesée des cristaux obtenus après traitement de l'essence par la soude puis par l'acide chlorhydrique, les auteurs japonais après avoir, pour débiter, opéré de la même façon, redissolvent les cristaux formés, dans la lessive de soude et poursuivent leur dosage d'une façon à peu près semblable à celle indiquée dans la méthode de KREMERS et SCHREINER.

C'est de la méthode proposée par KARIYONE et ATSUMI que nous nous sommes surtout inspirés pour mettre sur pied le procédé suivi dans toutes les analyses nécessitées par nos recherches et

que nous allons exposer ci-dessous. Mais, comme nous estimons qu'un acheteur doit être renseigné, non seulement sur la quantité de cristaux de thymol qu'il peut retirer d'une essence, mais aussi sur la proportion totale des phénols qui sont contenus dans cette dernière, nous avons cru devoir compléter le procédé de KARIYONE et ATSUMI en le faisant précéder d'une détermination des phénols totaux exprimés en thymol.

B. — Procédé de dosage des essences à thymol donnant.

- 1° La proportion de phénols totaux exprimés en thymol ;
- 2° la teneur en thymol cristallisable.

1° Dosage des phénols totaux exprimés en thymol. —

On pèse exactement 5 grammes d'essence que l'on passe dans une ampoule à décantation avec 40 cc. d'éther de pétrole. On ajoute 20 cc. d'une solution de soude à 5 %, puis on agite pendant 3 minutes environ et on laisse reposer. On décante ensuite la solution alcaline des phénols, lorsque la séparation des deux liquides est bien nette dans l'ampoule à décantation. La même opération est recommencée deux fois, mais en utilisant seulement, chaque fois, 10 cc. de solution de soude à 5 %. On réunit alors tous les liquides de décantation, et on porte leur volume à 250 cc. par addition de soude à 5 %.

On prélève 10 cc. de cette solution; on y ajoute 50 cc. d'une solution décimale d'iode. On agite, puis on laisse reposer pendant quelques minutes. On acidifie alors par de l'acide chlorhydrique à 15 %. La liqueur brunit par suite de la mise en liberté de l'iode de l'iodate de soude formé lors de l'addition de l'iode N/10. On complète à 250 cc. avec de l'eau distillée et on filtre sur amiante sèche, à la trompe. Le filtrat contient l'iode qui ne s'est pas combiné avec les dérivés phénoliques. On en prend 50 cc. et on titre l'excès d'iode au moyen d'une solution d'hyposulfite de soude décimale. Comme indicateur on se sert du chloroforme.

Soit N le nombre de centimètres cubes d'hyposulfite employé. La proportion de phénols totaux exprimés en thymol, pour 100 grammes d'essence sera donnée par la formule :

$$(50 - 5 N) 0,0037528 \times 500$$

2° Dosage du Thymol. — On pèse 5 grammes d'essence que l'on passe dans une ampoule à décantation avec 40 cc. d'éther de

pétrole. On ajoute 20 cc. de solution de soude à 5 % ; on agite pendant deux à trois minutes. On laisse reposer et on décante la solution alcaline des phénols. On recommence deux fois la même opération, mais chaque fois avec seulement 10 cc. de solution de soude à 5^o/_o. Tous les liquides de décantation sont réunis. On acidule par de l'acide chlorhydrique à 45^o/_o jusqu'à légère acidité. On met refroidir sous un courant d'eau froide. Au besoin, on amorce la cristallisation avec un cristal de thymol. On laisse celle-ci se faire complètement. On passe alors sur un entonnoir en porcelaine à filtre de toile fine; on essore les cristaux ; les lave une fois avec 20 cc. d'alcool à 40^o/_o et 30 cc. d'eau distillée. On dissout les cristaux formés dans de la soude à 5^o/_o de manière à faire 250 cc. de solution. On continue alors comme pour le dosage des phénols totaux.

Soit N' le nombre de centimètres cubes d'hyposulfite de soude employé. La proportion de Thymol contenue dans 100 grammes d'essence sera donnée par la formule : •

$$(50 - 5 N') 0,0037528 \times 500$$

Telle est la méthode que nous avons suivie pour doser les essences des plantes à thymol étudiées au cours du présent travail. Facile d'application, elle permet de donner à l'acheteur d'une essence toute certitude sur la quantité de thymol qu'il pourra en extraire. Toutefois, il convient de faire remarquer que lorsque la proportion de carvacrol contenue dans une huile essentielle à côté du thymol est trop élevée, c'est-à-dire dépasse environ 25^o/_o, il est extrêmement difficile de faire cristalliser le thymol et partant de doser ce dernier. Il semble que le carvacrol agisse comme dissolvant du thymol et empêche sa cristallisation. On devra donc tenir compte de cette observation lorsqu'on emploiera la méthode qui vient d'être décrite.

CHAPITRE III.

Etude monographique des plantes à Thymol.

Ajowan (*Carum copticum* Benth.).

Syn. : *Ligusticum Ajowan* Roxb., *Ptychotis Ajowan* D.C., *Ptychotis copticum* D.C., *Carum Ajowan* Benth. et Hook, *Ammi copticum* L. (1).

Noms vern. : ajowan, ajwân, jowân, ajamo, chochara, owa, jawind, aman, oman, omami, omamu, omu, oma, ajwân.

En angl. : the Bishop's weed.

L'Ajowan, dont les fruits sont longtemps restés l'unique source naturelle de thymol, exploitée par l'industrie, est une petite plante herbacée, annuelle appartenant à la famille des Ombellifères. On la cultive aux Indes depuis les temps les plus reculés et ses graines auraient été importées, en Europe, pour la première fois, en 1549. Aujourd'hui, en dehors des Indes où elle est produite sur une vaste échelle, surtout au Bengale, on la rencontre en Perse, en Afghanistan et dans le Balouchistan, dans l'archipel Malais, en Palestine et en Mésopotamie, en Arabie, en Abyssinie et dans l'Erythrée, toutes régions où elle est ou a été cultivée. Mais, nulle part, on ne l'a trouvée à l'état spontané, de sorte qu'il a été jusqu'ici impossible de savoir quel était son pays d'origine.

Aux Indes, on fait grand usage de l'Ajowan ; non seulement ses fruits sont utilisés comme condiment, alors qu'on les ajoute aux « curries », mais aussi en médecine populaire, car on leur reconnaît des vertus astringentes, aphrodisiaques, vermifuges et

(1) D'après M. T. A. SPRAGUE (*Pharm. Journ.*, Londres, 1922, 108, 3062, 540) le *Sison Ammi* L. qui fournissait à la pharmacie les véritables graines d'Ammi, « *Ammios veri semina* », ne serait autre chose que l'Ajowan.

diurétiques. Sous le nom d' « *Omum-water* », on vend dans les bazars indiens l'eau de distillation des graines d'Ajowan, tandis que les cristaux qui se séparent de l'essence de ces graines, et qui ne sont pas autre chose que du thymol, constituent ce qu'on appelle, dans les mêmes bazars, la « fleur d'Ajowan » (*ajwain-kaphul*).

Jusqu'en 1914, la presque totalité des graines d'Ajowan produites aux Indes étaient exportées, par Bombay, sur l'Europe et principalement sur l'Allemagne. En 1903, il en fut ainsi expédié 432 tonnes. Mais, depuis la guerre, des usines se sont installées dans l'Inde centrale, et notamment dans l'état de Dhar, afin de pouvoir extraire sur place le thymol des graines d'Ajowan. Et désormais, la fabrication du thymol se fait sur une large échelle aux Indes qui, au cours des deux années se terminant en juin 1919, ont pu en exporter près de 5 tonnes (exactement 10.500 livres anglaises).

Caractères botaniques de l'Ajowan.

Les tiges de l'Ajowan, dressées, ont, en moyenne, de 30 à 90 centimètres de hauteur ; elles sont généralement glabres ou très légèrement pubescentes. Les feuilles, peu nombreuses, sont finement découpées en lobes multifides, tous linéaires. Les fleurs sont groupées en ombelles composées à 6-8 rayons. Toutes les pièces de l'involucre et des involucelles sont entières et linéaires et les pétales, d'un blanc très pur. Les fruits d'Ajowan qui constituent la partie intéressante de la plante, puisque ce sont eux qu'on distille pour l'extraction du thymol, ressemblent par leur poids et leur forme à ceux du Persil, dont ils se distinguent d'ailleurs par leur odeur caractéristique de thymol. Ils sont ovoïdes, élargis à leur base, et, lorsqu'ils sont entiers, munis à leur sommet d'un stylopode large et court. Leur teinte est brun-jaunâtre.

Les méricarpes, isolés, sont droits ou légèrement incurvés ; ils portent chacun 5 côtes, de couleur plus claire, filiformes, faisant légèrement saillie au dehors. A la loupe chaque méricarpe laisse voir, en section, 6 canaux sécréteurs, bien apparents, tous de grosseur sensiblement égale, dont deux sont logés sur la face commissurale et 4 dans les vallécules.

Au microscope, le fruit d'Ajowan présente la structure suivante. Les cellules de l'épicarpe, de forme polygonale, à peine allongées tangentiellement, ont leurs parois minces et légèrement ondulées. Elles sont pourvues d'un revêtement cuticulaire épais. Quelques-

unes d'entre elles sont transformées en poils, particulièrement au niveau des côtes. Ces poils affectent deux formes bien distinctes (1) : les uns coniques, courts, unicellulaire et laissant après leur chute, sur les cellules où ils étaient insérés une cicatrice bien apparente ; les autres hémisphériques, ampulliformes, ou renflés en massue et très larges ; ceux-ci laissent en tombant une large cicatrice, ovale ou arrondie, qui est entourée par 5 à 6 cellules.

Le mésocarpe se compose d'un parenchyme lâche, à parois minces, qui fréquemment, vers l'intérieur, est détruit en partie. Les faisceaux libéro-ligneux sont accompagnés de cellules scléreuses à parois sinueuses, ou ondulées, faiblement ponctuées. Les canaux sécréteurs, au nombre de six, siègent dans la partie interne du mésocarpe ; ils sont elliptiques et mesurent $185\ \mu$ de long, sur $42\ \mu$ de large. Extérieurement à chaque faisceau libéro-ligneux, contre l'épicarpe, on rencontre souvent de petits canaux sécréteurs secondaires.

Les cellules de l'endocarpe sont toutes allongées en direction tangentielle ; elles sont polygonales, à parois légèrement brunâtres.

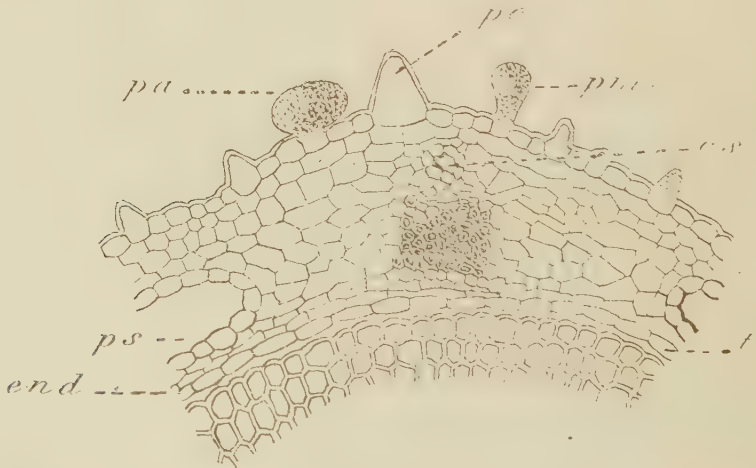


FIG. 1. — Section transversale d'un méricarpe de *Ptychotis Ajowan*.

alb, albumen ; *cs*, canal sécréteur caulinaire ; *ps*, canal sécréteur du méricarpe ; *end*, endocarpe ; *pa*, poils ampulliformes de l'épicarpe ; *pe*, poils coniques ; *pm*, poils en massue ; *t*, assise du tégument séminal (D'après Em. PERROT et E. COLLIN).

(1) COLLIN (E.) et PERROT (Em.).— Les résidus industriels utilisés par l'agriculture comme aliments et comme engrais, p. 219, 1 vol., Paris 1901, J.-B. Baillière, éditeur.

Culture de l'Ajowan.

Aux Indes (1), on ensemeence d'octobre à novembre ; les graines sont semées en place à environ 40 cm. les unes des autres, en lignes. On devra éviter une fumure trop forte qui aurait plutôt un effet nuisible ; par contre, il est nécessaire de fournir à la plante une quantité d'eau relativement importante. La récolte a lieu généralement six mois après les semailles, c'est-à-dire vers le mois de mai. On peut tabler sur un rendement moyen de 1.300 kilogs de graines à l'hectare.

Depuis la guerre, le gouvernement anglais s'est préoccupé de développer la production du thymol, et c'est pourquoi, en dehors des Indes, il a entrepris la culture de l'Ajowan aux îles Seychelles, et dans l'île de Montserrat (Petites Antilles).

Richesse en essence et teneur en thymol de l'Ajowan.

Les fruits de l'Ajowan des Indes donnent à la distillation de 3 à 4 % d'essence. Celle-ci, qui est incolore ou légèrement brunâtre, possède une odeur caractéristique de thymol, une saveur brûlante et laisse à la longue déposer de petits cristaux de thymol. Elle renferme près de la moitié de son poids de thymol, c'est-à-dire environ 45 à 50 %. Cette forte teneur justifie l'utilisation qui est faite depuis longtemps de l'essence d'Ajowan comme source industrielle du thymol.

L'Ajowan cultivé en dehors des Indes n'a pas toujours donné exactement les mêmes rendements que ceux obtenus dans ce pays. Aux Seychelles, d'après les analyses faites par l'*Imperial Institute*, les graines d'Ajowan fournissent environ 9 % d'huile essentielle renfermant 38 % de thymol. Elles ont, comme on voit, une teneur moindre en thymol que les graines originaires des Indes, mais par contre fournissent un rendement à peu près triple en essence. En définitive, alors que les graines d'Ajowan des Indes donnent à l'analyse environ 45 % de leur poids, de thymol, celles provenant des Seychelles en fournissent 3,4 %. De sorte que si leur richesse en essence se maintient, les graines d'Ajowan produites aux Seychelles sont en passe d'être une source plus précieuse de thymol que celles des Indes.

Quant à l'Ajowan cultivé à Montserrat, pendant la période 1916-1917, ses graines ont donné à la distillation 3,4 % d'huile

(1) D'après WATT, *The commercial products of India*.

essentielle renfermant 54 % de thymol, c'est-à-dire des rendements très voisins de l'Ajowan des Indes.

Enfin, il y a une vingtaine d'années, SCHIMMEL et Cie ont tenté la culture de l'Ajowan à Miltitz (1), en Saxe. La distillation de la *plante entière*, fraîche, a donné un rendement en essence de 0,12 %. Celle-ci, contrairement à l'essence obtenue des fruits, ne renfermait qu'une quantité insignifiante de thymol, environ 1 %.

Thymus Zygis L.

Syn. : *Thymus tenuifolius* Boiss ; *Thymus tenuifolius* Mill.

En espagnol : *Tomillo risquero*.

Alors qu'au cours de la guerre, le thymol était devenu de plus en plus rare, une observation toute fortuite d'un employé de la Maison RUBECK, de Londres, aiguilla cette dernière sur la fabrication de ce produit à l'aide d'une essence de thym de provenance espagnole. L'employé en question avait en effet constaté que cette essence, en coulant sur la paroi externe des flacons qui la contenaient, y laissait déposer des cristaux qui furent immédiatement reconnus pour être du thymol. Depuis, la maison RUBECK, ainsi d'ailleurs que d'autres firmes installées en Espagne, et notamment à Barcelone, retirent ce phénol de *certaines* essences de thym. Car il ne faut pas croire que toutes les essences de thym d'Espagne peuvent convenir à l'industrie de la préparation du thymol. La composition de celles-ci est, en effet, extrêmement variable et d'après leurs constituants principaux on peut les diviser en trois groupes :

- 1° Essences de thym à thymol ;
- 2° Essences de thym à carvacrol ;
- 3° Essences de thym à citral.

Ces dernières sont principalement fournies par les deux espèces : *Thymus hiemalis* Lange, qui donne l'essence de verveine d'Espagne, et *Thymus hirtus* Wild.

Quant aux essences des deux premiers groupes, il est, même encore aujourd'hui, parfois difficile de dire quelles sont les espèces botaniques qui les produisent. C'est que la péninsule ibérique est particulièrement riche en thym ; elle en possède plus de 30 espèces. D'après WILLKOMM il y en aurait 39 ; dans l'édition de 1921 de sa Flore d'Espagne, BLAS LAZARO e IBIZA en a décrit 31.

(1) *Bericht von Schimmel & Co*, oct. 1903.

Or, fréquemment, ces espèces croissent au contact les unes des autres et couvrent des espaces immenses, sortes de garrigues analogues à nos lavanderaies du sud-est, et auxquelles les espagnols ont donné le nom de « **tomillares** » (de tomillo = thym). Ces « **tomillares** » se rencontrent notamment dans les provinces de Catalogne, Valence, Grenade, Nouvelle Castille, Aragon. Et, comme d'autre part, l'industrie des essences en Espagne est, encore souvent primitive ; que non seulement la distillation, mais aussi la récolte est effectuée sans soin, on conçoit qu'il soit très difficile d'affirmer la source botanique précise d'une essence de thym espagnole. Cependant toutes les espèces croissant en Espagne ne sont pas distillées ; seules sont exploitées celles qui existent en abondance, et d'après DORRONSORO on y distille actuellement :

Thymus vulgaris = **Tomillo corriente** ou **Tomillo aceitunero** ;

T. Zygis = **Tomillo risquero** ;

T. mastichina.

T. hiemalis = **Tomillo sanjuanero** ;

T. capitatus = **Tomillo carrasqueño** ou **Tomillo andalus**.

C'est donc parmi ces cinq espèces que se trouve celle utilisée comme source de thymol.

Grâce à un copieux échantillonnage qui nous a été fourni par M. A. ALLAND, il nous a été possible de préciser, après E. M. HOLMES, que l'espèce de thym espagnol distillée en vue de l'extraction du thymol était le *Thymus Zygis* L., ou plus exactement *Thymus Zygis* L. var. *gracilis* Boiss. Nous sommes arrivés à cette conclusion, d'une part en déterminant les thyms que distillait un fabricant de thymol de Barcelone, et de l'autre en distillant nous-même un lot d'environ 5 kilogrammes entièrement composé de *T. Zygis* récolté dans la région de Malaga, ce qui nous a permis de constater la teneur en thymol extrêmement élevée de l'essence recueillie.

Etude botanique du *Thymus Zygis*.

Il est curieux de noter que, jusqu'à présent, le *Thymus Zygis* a été uniquement rencontré en Espagne et au Portugal ; on doit donc le considérer comme une espèce spéciale à la péninsule ibérique. Cette plante forme de petites touffes buissonnantes, de la grosseur du poing, qu'on rencontre en quantité dans les endroits secs et graveleux, même dans les lieux désertiques des « sierras »

de la péninsule. Elle est particulièrement abondante dans les provinces de Catalogne, d'Aragon, de Nouvelle Castille, de Murcie, de Valence, d'Andalousie; on la trouve aux environs de Grenade, dans maints endroits de la Sierra-Nevada et dans les régions incultes de la côte, autour de Séville et de Huelva. BOISSIER, dans son *Voyage en Espagne*, écrit qu'elle est extrêmement répandue dans toute la Castille, depuis Madrid et Aranjuez, jusqu'à Guadarrama.

Le *Thymus Zygis* (Pl. I) est une petite plante ligneuse de 10 à 30 centimètres de hauteur, à tige dressée et tortueuse. Ses feuilles, disposées en faisceaux, sont linéaires, en alène, avec leurs bords nettement roulés en-dessous (feuilles révolutes); elles sont presque glabres ou à peine pubérulentes et portent, à leur base, de nombreuses glandes roussâtres et des cils. Les fleurs, d'un blanc légèrement teinté de rose, sont nombreuses et groupées en sorte de glomérules espacés les uns des autres, de telle façon qu'ils forment un épi discontinu. Les bractées sont à peine plus larges que les autres feuilles. Le calice, très légèrement pubescent, porte à sa lèvre supérieure des dents ovales et aigues, tandis que les dents de la lèvre inférieure, presque égales, sont en alène (subulées) et ciliées. La corolle, blanchâtre, est plus grande que le calice.

Nombre de ces caractères se retrouvent dans le *Thymus vulgaris*; aussi les deux espèces se ressemblent-elles quelque peu. Mais on peut les distinguer aisément, grâce aux cils blanchâtres situés à la base des feuilles du *T. Zygis* et qu'on ne retrouve pas dans le thym vulgaire. Cette particularité n'avait pas échappé à LINNÉ, car en donnant la description du *Thymus Zygis* il écrivait : « *facies Thymus vulgaris at folia basi ciliata* ». La disposition des fleurs, en épi discontinu dans le *T. Zygis*, et la couleur de la corolle permettent également de séparer les deux espèces l'une de l'autre. Elles ne fleurissent d'ailleurs pas à la même époque : le thym vulgaire étant en fleurs au printemps, tandis que la floraison du *T. Zygis*, plus tardive, n'a lieu qu'à l'été. Cette dernière espèce est extrêmement polymorphe. Suivant les endroits où on la récolte, elle peut présenter non seulement un aspect différent dans sa forme, mais des variations dans les caractères des inflorescences et des fleurs. Les échantillons qu'on récolte aux altitudes relativement élevées (1.500 à 2.000 m.) se distinguent nettement de ceux trouvés vers 300 et 500 mètres. C'est ce qui a conduit BOISSIER à distinguer dans l'espèce *Thymus Zygis* L. deux variétés :

1^o *Var. α gracilis* Boiss. (1).

2^o *Var. β floribundus* Boiss.

La variété *gracilis* a sa tige principale franchement dressée, les bords de ses feuilles nettement recourbés en dessous. Les inflorescences, nombreuses, sont toutes sessiles ; leurs fleurs sont brièvement pédicellées.

La variété *floribundus*, au contraire, a sa tige principale plus ou moins rampante, ce qui donne un aspect enchevêtré aux rameaux qu'elle porte. Ses feuilles sont moins nettement révolutes. Les inflorescences, beaucoup plus grosses, sont souvent rapprochées à la partie inférieure de la plante ; elles portent de nombreuses fleurs toutes sessiles. Ces dernières ont un calice plus long, et une corolle plus grande et plus saillante que celle de la variété *gracilis*. Alors que celle-ci se rencontre aux moyennes altitudes, la variété *floribundus* est franchement alpine et se récolte vers 1.300 et 1.500 mètres.

Il n'est pas invraisemblable de supposer qu'on a peut-être affaire à deux espèces affines, comme c'est le cas pour la lavande vraie (*Lavandula officinalis* Chaix) et l'aspic (*Lavandula latifolia* Vill.) dont les zones de végétation sont bien distinctes et qui, comme celles-ci, dans les régions où elles sont au contact l'une de l'autre, donneraient naissance à de nombreux hybrides. Dans cette hypothèse, il est probable que les essences produites par ces formes multiples n'ont pas la même composition. Le fait que la *var. floribundus* et la *var. gracilis* croissent à des altitudes différentes autorise à penser que leurs essences ne sont pas identiques. Ce sont là des points qui ont leur importance lorsqu'on envisage la production du thymol et qui méritent d'être élucidés.

Quoi qu'il en soit, les thyms d'Espagne que nous avons étudiés et distillés correspondaient à la formela plus extrême dans le sens de la petitesse des fleurs et par conséquent appartenaient à la *var. gracilis* du *Thymus Zygis*. C'est donc cette variété qui doit être considérée comme source du thymol préparé en Espagne.

Etude anatomique de la feuille de *Thymus Zygis*.

L'étude anatomique confirme les caractères de morphologie externe qui viennent d'être décrits. Une section transversale de la feuille de *T. Zygis* présente en effet la structure histologique d'une plante à végétation nettement xérophytique : les deux extrémités

(1) *Thymus tenuifolius* Mill. correspond seulement à cette variété α, tandis que *T. tenuifolius* Boiss. comprend les deux variétés α et β.

sont repliées en dedans, de telle sorte que l'épiderme inférieur de la feuille se trouve être au fond d'une cavité (fig. 2).

La nervure médiane comprend un faisceau libéro-ligneux peu développé (fig. 3), composé de quelques vaisseaux du bois et d'une mince couche de liber mou ; ce faisceau est coiffé, à sa partie inférieure, par un péricycle très développé dont les cellules ont leurs parois épaissies et sclérifiées.

Le mésophylle, bifacial, comprend sous l'épiderme inférieur deux rangées de cellules palissadiques, au-dessous desquelles se trouve un parenchyme lacuneux constitué par des cellules de forme irrégulière laissant entre elles de grands méats.

Les deux épidermes ont des caractères à peu près identiques ; ils sont composés de cellules régulières recouvertes d'une cuticule épaisse, et qui, de face, ont un contour légèrement sinueux. Ils portent, l'un et l'autre, de nombreux poils tecteurs, *unicellulaires*, coniques, ceux de l'épiderme inférieur étant nettement plus aigus et plus allongés. De plus, l'épiderme supérieur est très riche en glandes sécrétrices qui sont logées dans des dépressions du limbe : elles sont toutes sessiles et octocellulaires. Les stomates sont franchement exserts et, vus de face, disposés perpendiculairement à la cloison séparant les cellules annexes, comme c'est fréquemment le cas chez les plantes appartenant à la famille des Labiées ; les cellules stomatiques sont recouvertes d'une cuticule très épaisse.

Richesse en essence et teneur en Thymol du *Thymus Zygis* L. var. *α-gracilis* Boiss.

La distillation de 4 kg. 630 de tiges fleuries de *Thymus Zygis* L. var. *α-gracilis* Boiss. nous a donné 48 gr. 50 d'essence, soit un rendement de 1,048 $\frac{\circ}{\circ}$. Cette essence, de couleur orangé légèrement verdâtre, a une odeur franche d'essence de thym et, si on l'abandonne dans un endroit frais, laisse déposer de petits cristaux de thymol.

L'analyse nous a donné une teneur de 74,11 $\frac{\circ}{\circ}$ en phénols totaux et de 51,18 $\frac{\circ}{\circ}$ en thymol cristallisable.

Une essence de *Thymus Zygis*, qui nous avait été adressée directement de Barcelone, et que nous avons tenu à doser comparativement à celle distillée par nous, contenait 73,18 $\frac{\circ}{\circ}$ de phénols totaux et 48,68 $\frac{\circ}{\circ}$ de thymol.

Dans toutes nos analyses, le thymol cristallisait très rapidement en très jolis cristaux.

L'essence de *Thymus Zygis* doit donc être considérée comme très riche en thymol, puisqu'elle le renferme dans la proportion

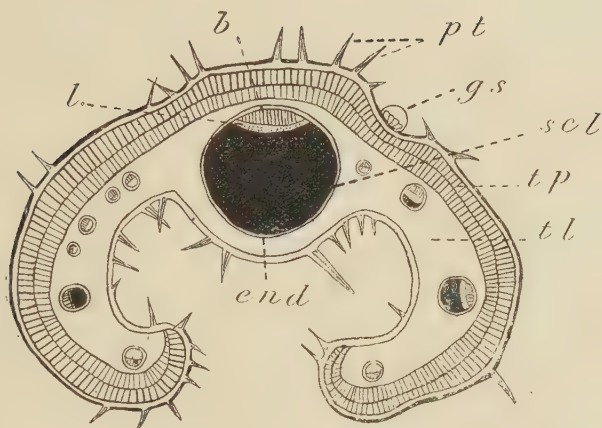


FIG. 2. — Coupe transversale schématique de la feuille de *Thymus Zygis* L. var. *α gracilis* Boissier.

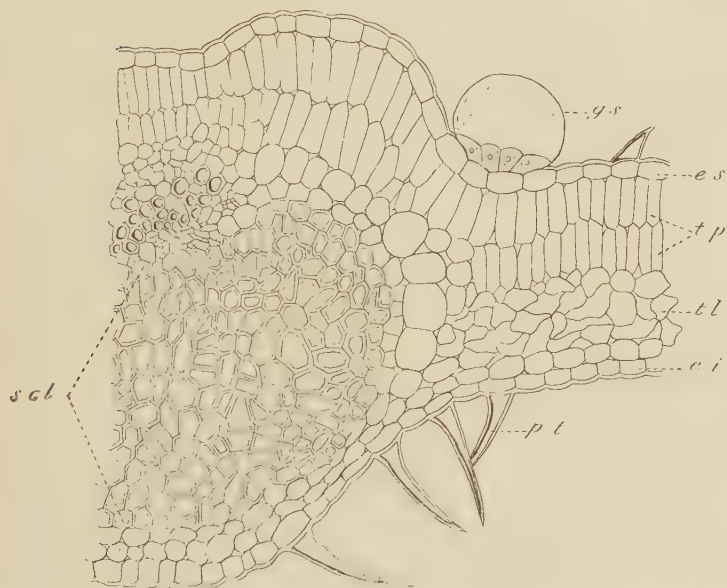


FIG. 3. — Coupe transversale de la nervure médiane de la feuille de *Thymus Zygis* L. var. *α gracilis* Boissier.

es, épiderme supérieur ; ei, épiderme inférieur ; tp, tissu palissadique ; tl, tissu lacuneux ; b, bois ; l, liber ; end, endoderme ; scl, sclérenchyme péricyclique ; pt, poils tecteurs ; gs, glande sécrétrice.

d'environ 50 $\frac{0}{0}$, et, partant, comme étant une source très intéressante pour la préparation de ce corps.

Ocimum gratissimum L.

En 1913, la Maison ROURE-BERTRAND, de Grasse, donnait, dans son *Bulletin Scientifique* d'octobre, l'analyse d'une essence qui lui avait été envoyée de Dabakala (Côte d'Ivoire) par M. ROLLAND et qui provenait de la distillation d'une plante de la famille des Labiées, l'*Ocimum gratissimum* L. Les résultats de cette analyse indiquaient simplement que l'essence étudiée renfermait 44 $\frac{0}{0}$ d'éléments phénoliques, presque intégralement constitués par du thymol. Or, depuis cette époque, M. ROLLAND a entrepris une culture rationnelle de l'*Ocimum gratissimum* qui lui donne chaque année d'abondantes récoltes et de forts rendements en essence, à tel point que cette espèce peut désormais être considérée comme une source de premier ordre pour la préparation industrielle du thymol.

Etude Botanique de l'*Ocimum gratissimum* L.

BENTHAM a classé cette espèce dans la sous-section *gratissima*, de la section *Ocimodon*, du genre *Ocimum* (Labiées).

L'*Ocimum gratissimum* L. est une plante vivace, *frutescente*, atteignant 1 m. à 1 m. 50 de hauteur. Son ère de dispersion est très étendue. On la rencontre en effet : dans les Indes Orientales, à Ceylan, à Java, dans l'Afrique tropicale et dans l'Amérique tropicale (1).

Au Dahomey, l'espèce désignée par les indigènes sous le nom de « Tchiayo » et utilisée comme condiment n'est autre que l'*Ocimum gratissimum*, ainsi que nous avons pu nous en rendre compte en déterminant des échantillons qui avaient été envoyés de Porto-Novo, au Prof. PERROT.

La tige de cette plante, dont la section est quadrangulaire comme chez la plupart des Labiées, est presque glabre et fortement renflée aux nœuds. Les feuilles opposées, sont longuement pétiolées (Pl. II) ; elles sont de forme ovale, aiguës au sommet, atténuées à la base, et mesurent en moyenne 7 à 8 cm. de long sur 3 cm. de large. Leurs bords sont crénelés ou grossièrement dentés.

(1) ENGLER (A.) et PRANTL (K.). — *Die natürlichen Pflanzenfamilien*, Leipzig, 1894. IV, 3 a, p. 369.

Elles sont glabres sur toute la surface du limbe, et légèrement pubescentes le long des nervures.

Lorsqu'on les froisse, ces feuilles dégagent une odeur forte aromatique, rappelant celle du thym.

Les bractées sont en forme de fer de lance, hastées à la base.

L'inflorescence est en grappe simple, ou peu rameuse. Elle porte de nombreuses fleurs, pédicellées, de couleur blanc légèrement violacé et dont la corolle dépasse à peine le calice, qui est persistant. Les étamines sont franchement exsertes.

Les graines ovoïdes ont environ 1 mm. d'épaisseur ; elles sont d'un brun noirâtre, et leur surface est nettement chagrinée ; elles portent une petite tache blanche, bien visible à la loupe.

Au point de vue histologique, l'*Ocimum gratissimum* présente les caractères suivants :

Pétiole. — Le pétiole (fig. 4) est franchement incurvé en dedans à sa partie supérieure. Il possède, immédiatement au-dessous de l'épiderme, une large bande de collenchyme. Son système vasculaire est formé par un arc médian divisé en deux branches, et prolongé sur les côtés par deux petits faisceaux libéro-ligneux, logés chacun dans un des angles supérieurs du pétiole. En outre, il existe un second arc discontinu, situé à l'intérieur du précédent et dont les éléments présentent une disposition inverse par rapport à ceux du premier, et sont presque entièrement composés par du liber.

Les faisceaux de l'arc médian sont constitués par des files radiales, de chacune 4 à 5 vaisseaux du bois arrondis, et par une épaisse couche de liber.

L'épiderme, dont les cellules ont leurs parois légèrement ondulées, porte des poils tecteurs et des glandes sécrétrices. Les poils tecteurs sont de deux sortes ; les uns, coniques, très allongés, unisériés, pluricellulaires, ont leur base généralement formée d'un massif de huit cellules ; les autres, coniques également, mais très courts, sont unisériés, bicellulaires, et ont leur base constituée par un petit paquet de quatre cellules. Quant aux glandes sécrétrices, elles sont également de deux sortes : les premières franchement exsertes, sont pédicellées avec une tête quadricellulaire ; les secondes, sessiles, sont quadricellulaires, et sont enfoncées dans des replis profonds de l'épiderme.

Les stomates présentent les caractères généralement rencontrés dans les Labiées, c'est-à-dire qu'ils sont disposés perpendiculairement à la cloison séparant deux cellules voisines.

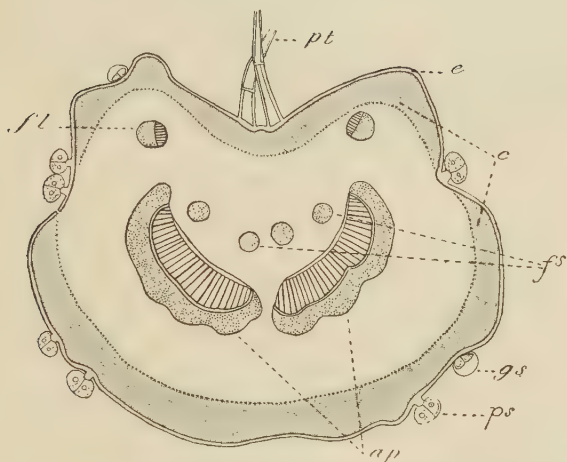


FIG. 4 — Coupe transversale schématique du pétiole d'*Ocimum gratissimum* L.

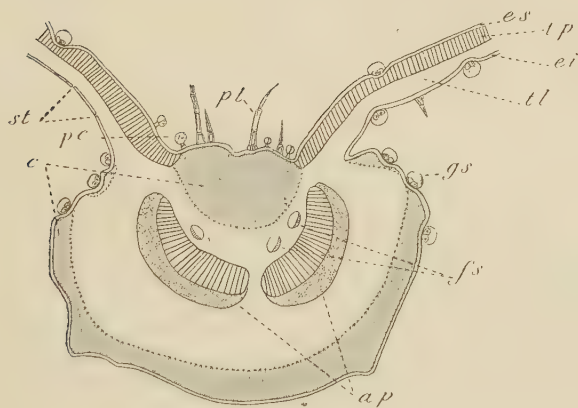


FIG. 5. — Coupe transversale schématique de la nervure médiane de la feuille d'*Ocimum gratissimum* L.

e, épiderme ; *es*, épiderme supérieur ; *ei*, épiderme inférieur ; *ap*, arc libéro-ligneux ; *fs*, faisceaux secondaires ; *fl*, faisceaux latéraux ; *tp*, tissu palissadique ; *tl*, tissu lacuneux ; *c*, collenchyme ; *pt*, poil tecteur ; *pc*, poil capité ; *ps*, poil sécréteur ; *gs*, glande sécrétrice ; *st*, stomates.

Feuille. — La structure de la feuille ne présente rien de particulier (fig. 5). Comme dans le pétiole, l'arc libéro-ligneux est divisé en deux masses ; les vaisseaux du bois et le liber ont les mêmes caractères que dans le pétiole. Le mésophylle hétérogène, bifacial, comprend sous l'épiderme supérieur une seule assise de

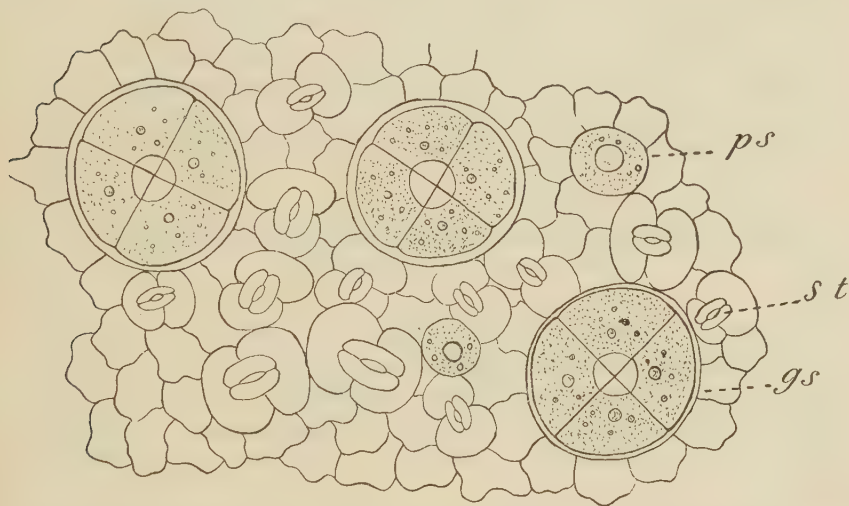


FIG. 6. — **Epiderme inférieure de la feuille d'*Ocimum gratissimum* L.**
ps, poil sécréteur ; *gs*, poil glanduleux sécréteur, quadricellulaire ; *st*, stomate.

tissu palissadique, au dessous de laquelle on trouve de 4 à 5 assises de tissu lacuneux. Les deux épidermes portent des poils et des glandes analogues à ceux du pétiole ; les poils tecteurs et les glandes pédicellées sont surtout localisés sur les deux faces de la nervure médiane, tandis que les glandes sécrétrices sessiles sont nombreuses sur les deux faces du limbe.

A la face inférieure, les stomates sont en nombre si grand qu'ils se touchent fréquemment par leurs cellules annexes (fig. 6).

Culture de l'*Ocimum gratissimum* à la Côte d'Ivoire.

La culture de l'*Ocimum gratissimum* telle que la pratique M. ROLLAND (1), à Dabakala, ne présente, semble-t-il, aucune diffi-

(1) Nous tenons à remercier ici, très cordialement, M. ROLLAND qui a bien voulu nous adresser feuilles sèches, graines et essence d'*O. gratissimum* pour nos recherches. La photographie de la Pl. II est celle d'un pied d'*Ocimum gratissimum*, élevé dans les serres de la Faculté de Pharmacie de Paris, et issu de graines qui m'avaient été envoyées par M. ROLLAND.

culté. On sème en pépinière, et on repique les jeunes plants lorsqu'ils ont environ 25 cm. de hauteur. La plante donne bien vite une touffe vigoureuse et peut atteindre, dans les terrains particulièrement favorables, jusqu'à 1 m. 80 de hauteur. La récolte se fait au moment de la floraison, en coupant à la faucille les sommités fleuries de la plante. Celle-ci supporte parfaitement la taille et repousse si vigoureusement qu'il est possible de faire une deuxième coupe dans l'année, voir même une troisième si les pluies sont très abondantes. C'est en somme une plante très rustique, qui peut vivre pendant de nombreuses années; seule une période de sécheresse trop longue pourrait la faire disparaître.

Rendement en essence et teneur en thymol de *Ocimum gratissimum* L.

D'après M. ROLLAND, la distillation des sommités fleuries d'*Ocimum gratissimum* doit être effectuée presque immédiatement après leur récolte; car, en les faisant sécher, les rendements sont, paraît-il, très mauvais. En moyenne, on retire une proportion d'essence correspondant à 0,60 % en poids de plante fraîche distillée.

L'essence d'*Ocimum gratissimum*, très limpide, est d'une belle couleur orangé-clair. Elle possède une odeur forte de thymol, provoquant rapidement un picotement des yeux et des fosses nasales. A la longue, et surtout si on l'abandonne dans un endroit frais, elle laisse déposer de petits cristaux de thymol.

L'analyse de l'essence d'*Ocimum gratissimum* provenant de Dabakala, nous a donné les résultats moyens suivants :

Teneur en phénols-totaux.....	56,29 %.
Richesse en thymol cristallisable.....	39,15 %.

En ce qui concerne la teneur en thymol, ces résultats sont légèrement inférieurs à ceux donnés dans l'analyse rapportée dans le *Bulletin de la Maison Roure-Bertrand*, et citée plus haut. Cela s'explique par la différence des procédés de dosage employés. Dans l'analyse de la Maison ROURE, « on a agité l'essence avec une solution aqueuse de soude »; c'est de la méthode de GILDEMISTER dont on s'est par conséquent servi. Or, nous avons dit p. 14 que cette méthode risquait de donner des chiffres supérieurs à la teneur vraie d'une essence en thymol: c'est ce qui a dû se produire dans l'analyse effectuée par la Maison ROURE-BERTRAND.

(1) *Bull. of the Imperial Institute*, vol. XVI, 1, Janvier-Mars 1918, p. 33.

En 1917, les services de l'*Imperial Institute* (1) ont eu à analyser une essence originaire des îles Seychelles et provenant de la distillation de l'*Ocimum gratissimum* introduit depuis plusieurs années dans ce pays. Les résultats de l'analyse ont montré une teneur en phénols de 62 %, constitués principalement par de l'eugénol. On voit qu'ils diffèrent considérablement de ceux donnés plus haut pour l'essence que nous avons étudiée, provenant de la Côte d'Ivoire. Aussi, bien que la détermination faite à Kew, de la plante distillée aux Seychelles, ait confirmé qu'on avait affaire à l'*Ocimum gratissimum*, je continue à penser qu'il s'agissait, dans ce cas, d'une toute autre espèce que celle cultivée depuis bientôt dix ans par M. ROLLAND, à Dabakala. A moins d'admettre que la plante ait trouvé aux Seychelles des conditions biologiques telles, que l'essence qu'elle sécrète ait acquis une composition différente de celle distillée à la Côte d'Ivoire ?

Quoi qu'il en soit, nous estimons que les résultats de nos dosages correspondent à la teneur réelle de l'essence d'*Ocimum gratissimum* en thymol. A notre avis, cette dernière doit être considérée comme une source excellente pour la préparation du thymol, en égard surtout à la possibilité d'obtenir au moins deux récoltes abondantes par an.

***Ocimum viride* Willd.**

La présence du thymol dans l'essence d'*Ocimum viride* semble avoir été mise en évidence pour la première fois, en 1907, par GOULDING (E.) et PELLY (R. G.) (1). Depuis cette époque, on ne s'était pas, semble-t-il, autrement préoccupé de cette espèce, et il a fallu la crise amenée dans l'industrie du thymol, par la guerre, pour attirer l'attention des services de l'*Imperial Institute* de Londres sur l'*Ocimum viride*.

Ceux-ci, dès 1915, firent des envois de graines de cette espèce dans différentes colonies anglaises de l'Afrique, afin d'en tenter la culture sur une échelle commerciale.

L'*Ocimum viride* est une plante très voisine de l'*Ocimum gratissimum*, avec lequel elle a d'ailleurs bon nombre de caractères communs. Originaire de l'Afrique occidentale où on la trouve notamment au Sierra Leone et en Guinée, elle a été introduite aux Seychelles, aux Indes, et dans les Petites Antilles. Au Sierra Leone, où on l'appelle « fever plant », ses feuilles sont employées

(1) *Bull. of the Imperial Institute*, vol. VI, 1908, p. 209.

comme fébrifuge à la façon du thé. En outre, sur toute la côte occidentale d'Afrique, on la connaît sous le nom de « mosquito plant »; car elle est, paraît-il, douée de propriétés culicifuges. L'espèce d'*Ocimum* non déterminée dans la flore de POBEGUIN (1), et qui en dialecte Malinké est désignée sous le nom de « sosso-guena », ce qui signifie « chasse-moustique », doit vraisemblablement être rapportée à l'*Ocimum viride*. D'après POBEGUIN, les tiges séchées de cette Labiée sont brûlées par les indigènes dans les cases, pour en éloigner les moustiques.

Comme l'espèce précédemment étudiée, l'*Ocimum viride* est une plante vivace, très rameuse, atteignant jusqu'à 1 m. 80 de hauteur. Ses fleurs, groupées en grappes rameuses, sont d'un blanc-verdâtre, caractère qui les distingue quelque peu de celle de l'*Ocimum gratissimum*. Mais c'est surtout les bractées et le calice qui diffèrent par leur forme, dans les deux espèces. Chez l'*O. viride*, les bractées sont ovales et acuminées, tandis qu'elles sont lancéolées au sommet et franchement hastées à la base chez l'*O. gratissimum*. Et alors que dans l'*O. viride* les sépales latéraux sont subulés et les inférieurs subconnés, dans l'*O. gratissimum* les sépales latéraux très petits sont également subulés, tandis que les inférieurs sont longuement connés en lèvre bi-mucronée.

Nous avons cherché à différencier les deux espèces par l'examen histologique de leur pétiole et de leur feuille. Ici également existe une grande similitude dans les caractères anatomiques.

Toutefois, alors que la face supérieure du pétiole est franchement incurvée en dedans chez l'*O. gratissimum* (fig. 4), elle est presque plane chez l'*O. viride* (fig. 7). Cette même différence se retrouve dans la section transversale des nervures médianes des deux feuilles. Au niveau de cette nervure, le limbe est creusé en gouttière à sa partie supérieure chez l'*O. gratissimum*, tandis qu'il est presque plan chez l'*O. viride* (fig. 8). Des coupes, faites à des niveaux différents du pétiole et de la nervure médiane, nous ont permis de vérifier la constance de ce caractère différentiel. Il convient de faire également remarquer, bien que ce soit là un caractère de moindre importance, que l'arc vasculaire médian est entier dans la feuille d'*O. viride*, alors qu'il est divisé en trois masses libéro-ligneuses chez l'*O. gratissimum*. Les épidermes des deux espèces présentent les mêmes poils tecteurs et glandes sécrétrices; mais, chez l'*O. viride*, les cellules de l'épiderme supérieur sont nettement plus petites (environ deux fois) que celles d'*O. gratissimum*.

(1) POBEGUIN (H.). — Essai sur la flore de la Guinée française, p. 113 et p. 228.

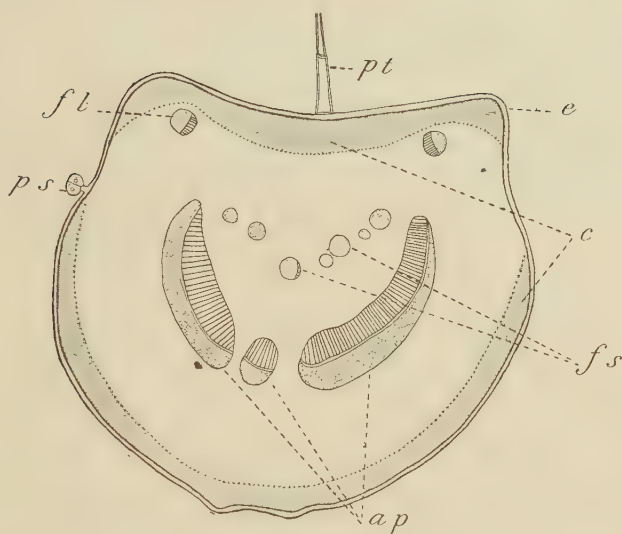


FIG. 7. — Coupe transversale schématique du pétiole d'*Ocimum viride* Willd.

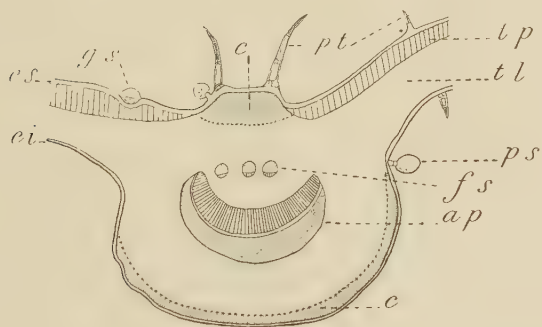


FIG. 8. — Coupe transversale schématique de la feuille d'*Ocimum viride* Willd.

e, épiderme ; *es*, épiderme supérieur ; *ei*, épiderme inférieur ; *ap*, arc libéro-ligneux principal ; *fs*, faisceaux secondaires ; *fl*, faisceaux latéraux ; *tp*, tissu palissadique ; *tl*, tissu lacuneux ; *c*, collenchyme ; *ps*, poil sécréteur ; *gs*, poil glanduleux sécréteur.



Culture de l'*Ocimum viride*.

La culture de l'*Ocimum viride* se pratique d'une façon analogue à celle de l'*Ocimum gratissimum*. Les semis se font en pépinière, et les jeunes plants sont mis définitivement en place lorsqu'ils ont environ deux mois. La plante atteint son développement normal au bout de 8 mois après le semis. De même que pour l'*Ocimum gratissimum*, il est possible de faire avec cette espèce plusieurs coupes par an. Le rendement à l'hectare, par coupe, est, en vert, d'environ 8.770 kilos.

Richesse en essence et teneur en thymol de l'*Ocimum viride*.

La première analyse d'essence d'*Ocimum viride* effectuée par GOULDING et PELLY, comme nous le rappelions plus haut, lui avait assigné les caractères suivants :

Huile essentielle de couleur jaune-orangé, à odeur aromatique de thym, à saveur âcre et cuisante ; poids spécifique à 15° C : 0,9115 ; teneur en thymol 32 %.

Les renseignements donnés dans la suite sur la composition de cette essence sont tout à fait différents de ceux-là. Ils correspondent à des essences provenant de la distillation effectuée sur place, en 1916, d'*Ocimum viride* cultivé aux îles Seychelles (1). Afin de se rendre compte de la richesse en essence des différentes parties de la plante, on a distillé séparément les feuilles et les sommités fleuries.

Essence de feuilles. — RENDEMENT : 0,5 % en poids de feuilles fraîches, essence brun-jaunâtre à odeur de thym, de densité 0,942 (à 15° C), renfermant 62 % de phénols.

Essence de sommités fleuries. — RENDEMENT : 0,45 % en poids de plante fraîche. Essence faiblement colorée en brun-jaunâtre, à odeur de thym, de densité 0,924 (à 15° C), renfermant 52 % de phénols.

On voit que, pour les deux essences, aucune précision n'est donnée sur la teneur réelle en thymol ; il est simplement dit que, dans les deux cas, les phénols paraissent entièrement consister en thymol. Cette indication n'est pas suffisante, à notre avis, et comme nous ne possédons aucun renseignement sur le mode de dosage employé, nous ne croyons pas devoir admettre les chiffres

(1) *Bull. of the Imperial Institute*, XV, 1917, p. 324.

de 62 % et 52 % comme correspondant à la teneur de l'essence d'*Ocimum viride* en thymol.

Par contre, nous retenons, pour cette dernière, les résultats indiqués par GOULDING et PELLY, et qui semblent d'ailleurs être confirmés par une analyse plus récente d'une essence d'*Ocimum viride* provenant également des îles Seychelles. Cette dernière essence (1), analysée par les services de l'*Imperial Institute*, a donné une teneur en thymol de 37 %, teneur confirmée par la firme anglaise qui avait acheté l'essence en vue de la fabrication du thymol. De sorte qu'il est vraisemblable d'admettre que l'essence d'*Ocimum viride* contient environ 32 à 37 % de thymol. On voit que cette teneur est très voisine de celle de l'*Ocimum gratissimum*. Aussi peut-on conclure, comme pour cette dernière espèce, que l'*Ocimum viride* doit être considéré comme une source intéressante pour la préparation industrielle du thymol.

Mosla japonica Maxim.

Le *Mosla japonica* Maxim. constitue, depuis plusieurs années, la source industrielle du thymol fabriqué actuellement au Japon. En fait, c'est à partir de 1889, date à laquelle HADA a isolé pour la première fois le thymol de cette plante, qu'on s'est préoccupé au Japon de la multiplication et de la culture de cette dernière.

C'est une petite plante herbacée, appartenant à la famille des Labiées, qu'on rencontre au Japon dans les lieux dénudés, pierreux, au bord des routes, sur les pentes des montagnes et sur les flancs de certains volcans (2). Suivant les endroits où on la trouve, elle présente une taille très variable ; extrêmement petite, presque naine, dans les régions boréales, montagneuses où elle dépasse à peine 3 cm., elle se développe d'avantage dans les parties plus tempérées de l'archipel nippon et peut atteindre facilement 30 cm. Par la culture, sa taille devient encore plus grande, témoin l'échantillon d'herbier représenté Pl. III et qui correspond à un sujet de 0 m. 50 de hauteur.

Elle fleurit vers la mi-septembre et donne, suivant les variétés, des fleurs blanches, roses ou pourpres.

Sa tige est simple, ou divariquée-rameuse, pourvue de poils. Les feuilles, plus ou moins longuement pétiolées, ont une forme

(1) *Bull. of the Imperial Institute*, XVIII, 3, 1920, p. 348.

(2) MAXIMOWICZ, C.-J. — Diagnoses plantarum novarum Japoniæ et Mandschuriæ. *Mélanges biologiques. Acad. des Sciences de St-Petersbourg*, 1873-1877, t. 9, p. 437.

ovale ou ovale-elliptique ; tandis que celles de la partie inférieure de la plante sont obtuses, les supérieures sont au contraire aiguës, en coin à la base. Leurs bords sont pourvus de dents nombreuses.

Les fleurs, disposées en grappes terminales, à verticilles rapprochés, sont presque entièrement cachées par les bractées, dont les dimensions sont relativement grandes. C'est d'ailleurs à ce dernier caractère que se reconnaît facilement le *Mosla japonica*.

Les bractées inférieures sont, en effet, presque aussi grandes que les feuilles ; quant aux bractées supérieures, elles sont sessiles, orbiculées, entières, brusquement cuspidées et munies de cils sur leurs bords.

Le calice, porté par un pédicelle plus court que lui, a de 2 à 3 mm. et est abondamment couvert de poils légèrement visqueux. D'abord à cinq dents inégales, il est ensuite normalement bilabié ; la lèvre inférieure a deux dents aiguës et est deux fois plus courte que la lèvre supérieure, tridentée.

La corolle, plus grande que le calice, est environ deux fois plus longue que large ; ses lobes latéraux ont la même hauteur, mais sont deux fois plus larges que les autres ; le lobe inférieur, deux fois plus long est sub-orbulaire, atténué à la base, subéréné au sommet.

Les étamines, fertiles, insérées sous la gorge de la corolle, ont la partie libre de leur filet égale à l'anthère ; leurs loges sont oblongues, arquées, divariquées.

Les étamines stériles sont insérées plus haut que les précédentes, la longueur de leur filet égalant deux fois celle de l'anthère ; leurs loges, trois fois plus courtes que les fertiles, sont suborbiculaires, dentiformes.]

Le style est court et atteint la base de la partie libre des filets supérieurs. Le stigmate, large, a ses branches qui égalent la longueur totale de l'anthère fertile.

L'anneau de poils, qui existe chez les autres espèces du genre à l'intérieur de la corolle, fait ici totalement défaut ; il est remplacé par un repli circulaire de l'épiderme, peu distinct, situé au niveau du sommet de l'ovaire.

Les graines, brunes, globuleuses, sub-ovales, mesurent environ 1 mm. d'épaisseur ; leur surface est légèrement réticulée-aréolée.

Etude anatomique du pétiole et de la feuille de *Mosla japonica* Maxim.

Pétiole. — La structure du pétiole est très simple, et ne présente rien de particulier (fig. 9). Celui-ci est parcouru, dans une bonne

partie de sa largeur, par un arc vasculaire à peine ouvert, prolongé à chacune de ses extrémités par un ou deux petits faisceaux libéro-ligneux. L'arc principal est constitué par des files radiales de 5 à 6 vaisseaux du bois, disposées en éventail, et par un liber composé de 4 à 5 assises de cellules. Le péricycle et l'endoderme sont très peu différenciés. Quant aux petits faisceaux latéraux, ils comprennent chacun 4 à 5 petits vaisseaux du bois et un filot de liber.

Une bande de collenchyme rond, située sous l'épiderme, fait le tour presque complet du pétiole ; elle présente seulement une brève interruption au niveau des ailes.

L'épiderme, constitué par des cellules à parois ondulées, un peu épaissies sur la face interne et sur la face externe, est recouvert par une cuticule très finement plissée. Il est pourvu de stomates exserts dont la disposition par rapport aux cellules annexes, si fréquentes chez les Labiées, est la même que celle qui a été décrite plus haut pour le *Thymus Zygis* et l'*Ocimum gratissimum*. Il possède en outre trois sortes de poils : les uns pluricellulaires, unisériés, à base quadricellulaire, plus spécialement localisés au niveau et au-dessus de l'arc vasculaire médian ; les seconds, qui sont de petits poils capités, à pied unicellulaire et dont la tête est composée de 4 cellules ; et enfin, des glandes sécrétrices, octocellulaires, sessiles, enfoncées dans de petites dépressions de l'épiderme. Ces glandes se rencontrent surtout sur la face inférieure du pétiole.

Feuille.— La structure de la nervure médiane présente dans son système vasculaire, une analogie complète de caractères avec celle du pétiole (fig. 10).

Le mésophylle est hétérogène, bifacial. Il comprend, sous l'épiderme supérieur, une assise de cellules palissadiques au-dessous de laquelle se trouve un tissu lacuneux, assez serré, composé de 4 à 5 assises de cellules. Les cellules palissadiques et celles du tissu lacuneux ont leurs parois ondulées et offrent, ainsi, un aspect tout particulier (fig. 11).

Les deux épidermes ne présentent rien de caractéristique. L'un et l'autre possèdent d'assez nombreux stomates franchement exserts, et des poils identiques à ceux rencontrés chez le pétiole : poils pluricellulaires, unisériés à base quadricellulaire ; petits poils capités à pied unicellulaire et à tête quadricellulaire et enfin glandes sécrétrices, sessiles, octocellulaires (fig. 12).

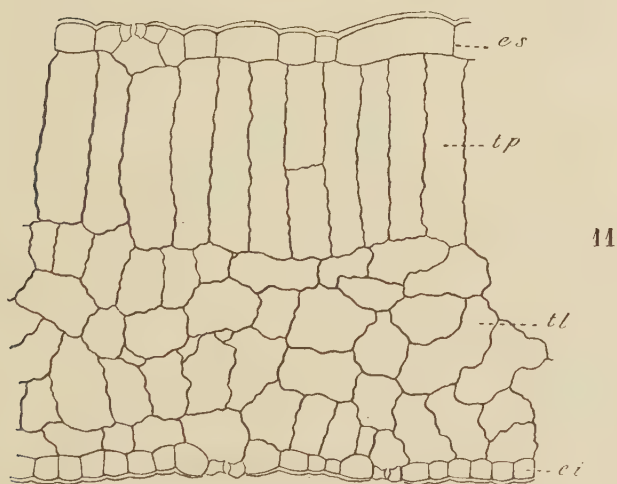
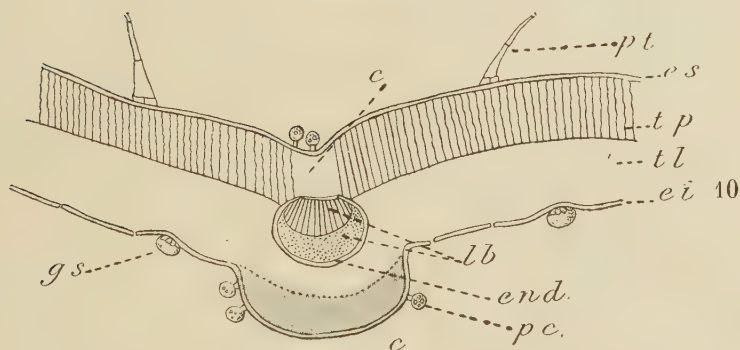
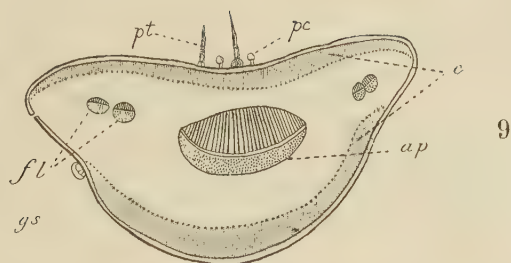


FIG. 9. — Coupe transversale schématique du pétiole de *Mosla japonica* Maximow.

FIG. 10. — Coupe transversale schématique de la feuille de *Mosla japonica* Maximow.

FIG. 11. — Détail du limbe de *Mosla japonica* Maximow.

es, épiderme supérieur, ei, épiderme inférieur ; ap, arc libéro-ligneux principal ; fl, faisceaux latéraux ; lb, faisceau libéro-ligneux ; end, endoderme ; c, collenchyme ; tp, tissu palissadique ; tl, tissu lacuneux ; pt, poil tecteur ; pc, poil capité ; gs, glande sécrétrice.

Rendement en essence et teneur en thymol de *Mosla japonica* Maxim.

Les renseignements qu'on possède jusqu'ici sur la composition de l'huile essentielle de *Mosla japonica* qui, dans son pays d'origine, est appelée « *essence d'Yamashiso* », sont loin d'être concordants.

Selon SHIMOYAMA (1), la distillation des tiges feuillées, sèches, de *Mosla japonica* donnerait 2,13 % d'une huile essentielle rouge-brunâtre, de poids spécifique 0,820 et renfermant du thymol dans la proportion de 44 %.

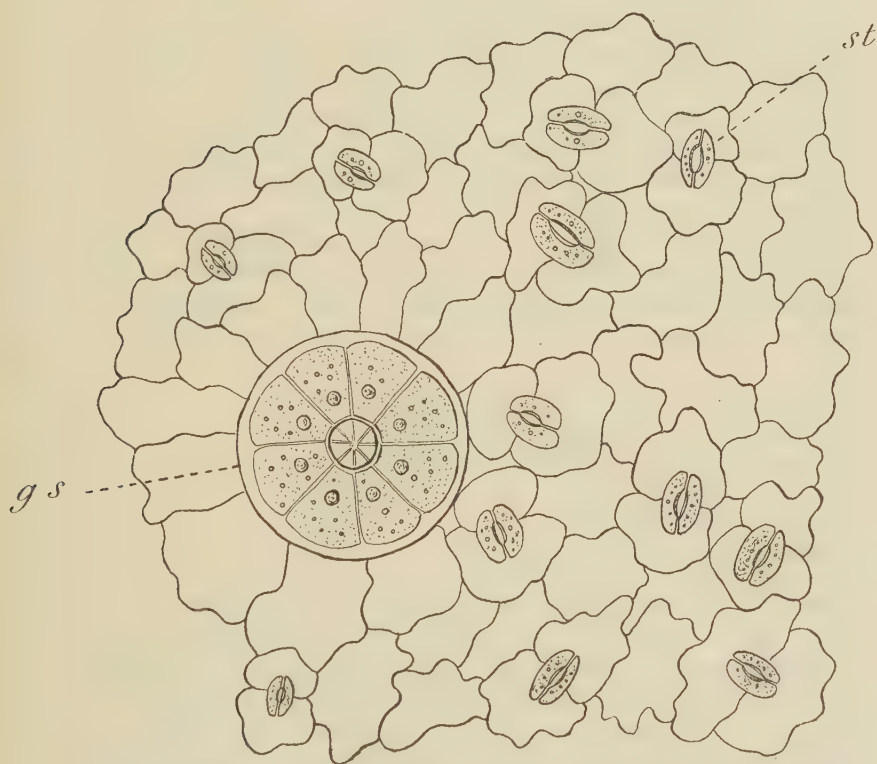


FIG. 12.— **Epiderme inférieur de la feuille de *Mosla japonica* Maximow.**
gs, glande sécrétrice octocellulaire ; *st*, stomate.

En 1909, MURAYAMA (1), dans une communication à la Société de Pharmacie du Japon, fit connaître que la teneur en essence de

(1) Voir GILDEMEISTER et HOFFMAN (*loc. cit.*), t. III, p. 599 et 600.

Mosla japonica était de 2 % et que celle-ci ne contenait pas de thymol mais bien du carvacrol.

Mais, plus récemment, HOSKINO (1) a confirmé, en partie, les résultats indiqués par SHIMOYAMA et, comme ce dernier auteur, a trouvé que l'essence de *Mosla japonica* renfermait bien du thymol, mais dans la proportion de 50,06 %.

Il ne nous a pas été possible de vérifier ces chiffres, n'ayant pu nous procurer d'essence de *Mosla japonica*. Nous tenons, cependant, à rapporter les renseignements qui nous ont été fournis verbalement par le chimiste japonais KARIYONE, lors de la visite qu'il nous a rendue l'an dernier, et qui, lui-même, a étudié la question.

D'après ce dernier, le *Mosla japonica* donne à la distillation 4,5 % d'huile essentielle, qui renferme 50 % de thymol.

Si une grosse divergence existe entre les résultats donnés par SHIMOYAMA d'une part, et par MURAYAMA de l'autre, c'est que ce dernier a dû, vraisemblablement, analyser une essence toute autre que celle de *Mosla japonica* Maxim., probablement celle de *Mosla grosserata* Maxim. qui, d'après FURUKAWA (2), renfermerait 25 % de carvacrol.

M. KARIYONE nous a, en outre, signalé qu'il existait une espèce très voisine du *M. japonica*, le *Mosla Hadaï Nakaï*, dont le rendement en essence est de 2 % et qui ne renferme pas de thymol, mais, au contraire, du carvacrol, dans la proportion de 60 %.

Monarda punctata L.

Syn. : *Monarda lutea* Michx.

Angl. : horsemint, bee balm.

Depuis 1846, on sait que l'essence de *Monarda punctata* L., petite Labiée vivace de l'Amérique du Nord, renferme une grande proportion de thymol. Et cependant, jusqu'en 1907, aucun effort ne semble avoir été entrepris pour tenter la culture de cette plante en vue de la préparation industrielle du thymol. Mais, à partir de cette dernière date, la *Section des Plantes Médicinales et Toxiques* du « Bureau of Plant industry » de Washington, prenait en main la question et, après de longues expériences de sélection, dont les résultats sont consignés dans un rapport de M. HOOD (3),

(1) *J. Chem. Ind.*, Tokio, 1910-22, 577.

(2) *J. Chem. Ind.*, Tokio, 1919-22, 382, d'après *Rivista italiana delle essenze e profumi*, Milan, 1920, An. II, n° 11, p. 132.

(3) HOOD (*loc. cit.*).

parvenait à obtenir une race de *Monarda punctata* donnant un fort rendement en feuilles, avec une teneur élevée en essence et en thymol. Alors que les plantes sauvages dont on était parti en 1908, de taille petite et pauvres en feuilles, fournissaient à peine 0,12 à 0,20 % d'huile essentielle contenant de 56 à 62 % de phénols, on est parvenu finalement, en 1915, à fixer une race vigoureuse, donnant une récolte abondante pour la distillation et contenant de 0,42 à 0,44 % d'essence avec une teneur en phénols de 72-74 %.

Caractères botaniques de *Monarda punctata* L.

Les espèces du genre *Monarda* sont toutes de jolies plantes herbacées, rustiques et vivaces, originaires de l'Amérique du Nord. Le *Monarda punctata* se rencontre, en particulier, dans les terrains sablonneux, sur les talus arides, depuis le sud de l'Etat de New-York jusqu'à la Floride. C'est une plante très utilisée dans la médecine populaire des Etats-Unis où on la connaît sous le nom de « Horsemint » et où elle jouit d'une faveur à peu près égale à celle de nos Menthes.

La tige finement velue, et qui peut atteindre environ 1 m. de hauteur, porte des feuilles pétiolées, simples, lancéolées, rétrécies à leur base.

Les fleurs sont réunies en verticilles axillaires entourées de bractées très développées. Ces dernières sont sessiles, lancéolées, légèrement jaunâtres ou purpurines à la base. Le calice, pubescent, dont l'orifice est légèrement velu, a ses dents presque égales, courtes, rigides et terminées en pointe. La corolle, dont le tube dépasse à peine le calice, est presque glabre, de couleur jaunâtre (*M. lutea*), tachetée de pourpre (*M. punctata*).

Culture de *Monarda punctata* L. aux Etats-Unis.

Les graines, récoltées dès leur maturité, c'est-à-dire, dans la région Sud-Est des Etats-Unis, vers août-septembre, sont semées sur couche, après avoir été préalablement mélangées à du sable sec, afin d'éviter un semis trop dru. On répand sur elles du terreau sur environ 3 mm. d'épaisseur et on recouvre d'une bâche. Une couche de 5 m² est suffisante pour fournir les plants nécessaires à une culture d'un demi-héctare. Si on a eu soin d'entretenir le semis en bon état d'humidité, les graines germent au bout de 6

à 40 jours, et deux mois après, les plants sont assez vigoureux pour être mis définitivement en place.

Le *Monarda punctata* se rencontre, à l'état spontané, dans des sols légers et sableux ; on devra donc tenir compte de cette observation lorsqu'on établira une plantation. De même, il faudra se souvenir que cette plante demande surtout de la chaux ; aussi devra-t-on éviter de la cultiver dans les terrains fortement acides, ou argileux-gras, ainsi d'ailleurs que dans ceux où l'humidité est excessive. D'excellents résultats ont été obtenus en répandant un engrais complet à base de sulfate d'ammoniaque, de phosphate acide et de sulfate de potasse et renfermant, pour cent, les éléments suivants : azote 4 %, acide phosphorique 6 % et potasse 10 %. Cet engrais doit être employé à raison d'environ 550 kilog. à l'hectare.

Généralement, les jeunes plants sont disposés à environ 50 cm. les uns des autres, sur des rangées distantes de 4 m. Cet espacement permet le passage d'un outil attelé à un cheval.

La récolte, qui doit avoir lieu au moment où les boutons floraux ne sont pas encore épanouis, s'effectue à l'aide d'une faucheuse à un cheval, spécialement adaptée pour couper les tiges à environ 45 cm. du sol. C'est à la fourche et non au rateau, qu'il convient d'amasser les plantes fauchées. Le *Monarda punctata* se reproduit, en effet, à la façon des Menthes, par marcottage naturel, et le rateau, en risquant d'arracher les tiges inférieures non encore parfaitement enracinées, détruirait les pieds, surtout dans les sols très légers. Une fois la plante récoltée, elle doit être immédiatement distillée sous peine d'obtenir un rendement moindre en essence. La distillation peut s'effectuer avec les appareils et suivant les méthodes généralement employées pour l'extraction de l'essence de Menthe poivrée.

On estime qu'une plantation de 4 an peut fournir un rendement d'environ 20 kg. d'essence à l'hectare; dans les années qui suivent, ce rendement est de 30 kg. et même, dans des conditions favorables, peut atteindre 40 kg. En principe, une plantation établie et exploitée suivant les indications qui viennent d'être sommairement rapportées, est à même de produire une récolte abondante pendant au moins cinq années ; mais au bout de cette période, il est nécessaire de la renouveler complètement. Notons, pour terminer, qu'il est possible de réaliser une économie sensible sur les engrais, à partir de la deuxième année, en répandant sur le sol les résidus de la distillation.

Rendement en essence et teneur en thymol de *Monarda punctata* L.

D'après HOOD, le rendement en essence de *Monarda punctata*, distillé en vert, varie de 0,18 % à 0,34 %. Ce dernier chiffre est atteint lorsqu'on récolte la plante au moment de la formation des boutons floraux. Il a même été dépassé, et, comme nous le rappelions plus haut, par voie de sélections, on est parvenu, aux Etats-Unis, à obtenir une race de *Monarda punctata* L., à feuillage clair, fournissant jusqu'à 0,44 % d'essence.

La teneur en phénols totaux de cette essence varie de 56 %, pour des plantes sauvages, à 74 % pour des plantes sélectionnées et cultivées. Le thymol constitue la plus grande partie de ces phénols ; HOOD (1) a pu obtenir un rendement commercial en thymol de 63,3 %.

Au cours de ces dernières années, le *Monarda punctata* a été cultivé, avec succès, à Montserrat. La distillation des feuilles fraîches récoltées dans cette île, a donné 0,27 % d'une huile essentielle de couleur jaune-citrin, à odeur franche de thym. Cette essence renfermait 60,4 % de phénols totaux, dont 44 % de thymol cristallisable.

Thymus Broussonnetii Boiss.

Au cours de sa récente mission au Maroc, le Professeur PERROT avait été frappé de l'abondance du *Thymus Broussonnetii* dans le sud-marocain, principalement entre Marrakech et Mogador où il couvre des steppes immenses. Sachant, d'autre part, que ce thym était utilisé par les indigènes contre les rhumes et les maux de gorge, M. PERROT en fit récolter un lot suffisant pour permettre d'en faire l'étude et notamment d'en déterminer la richesse en phénols.

Le *Thymus Broussonnetii* Boiss. est un très beau thym, suffrutescent, dont certains échantillons peuvent atteindre jusqu'à 40 cm. de hauteur (Pl. IV). Sa tige, presque glabre, dressée, est garnie de feuilles brièvement pétiolées, de forme ovale-lancéolée, légèrement obtuses au sommet ; ses feuilles sont glabres, mais, par contre, finement ponctuées sur toute leur surface, en raison des nombreuses glandes sécrétrices logées dans les deux épidermes. Les

(1) HOOD (*loc. cit.* p. 9).

fleurs sont groupées en capitules situés à l'extrémité des tiges. Ceux-ci sont entourés de grandes bractées, imbriquées les unes sur les autres, ovales, atténuées vers la pointe qui est aigüe ; de couleur violacée, elles sont complètement glabres, sauf sur leurs bords qui sont pourvus de tout petits cils.

Le calice est environ trois fois plus court que la corolle ; sa lèvre supérieure est divisée à son extrémité en trois petites dents, tandis que celles de la lèvre inférieure, qui est peu développée, sont extrêmement fines, en forme de soies. La corolle, pubescente, est de couleur rose

Etude anatomique de la feuille de *Thymus Broussonnetii* Boiss.

Une section transversale de la feuille de *Thymus Broussonnetii* faite au niveau de la nervure médiane présente les caractères suivants (fig. 13). Le faisceau libéro ligneux, en forme d'éventail, est composé de vaisseaux du bois disposés en files radiales, et d'une



FIG. 13. — Coupe transversale schématique de la feuille de *Thymus Broussonnetii* Boissier.

es, épiderme supérieur ; ei, épiderme inférieur ; tp, tissu palissadique ; tl, tissu lacuneux ; scl, sclérenchyme péri-cyclique ; end, endoderme ; c, collenchyme ; pt, poil tecteur ; gs, glande sécrétrice.

couche de liber peu épaisse. Il est flanqué, à sa partie inférieure, d'un sclérenchyme péri-cyclique analogue à celui que nous avons décrit dans la feuille de *Thymus Zygis* (voir fig. 2), mais beaucoup moins développé que dans cette dernière espèce. Chez le *T. Broussonnetii*, ce sclérenchyme ne comporte en effet, dans sa plus grande épaisseur, que six assises de cellules. A la partie supérieure du faisceau, le péri-cycle est réduit à quelques rares éléments sclérifiés.

L'endoderme est à peine différencié.

Le faisceau libéro-ligneux est relié à l'épiderme supérieur par une bande de collenchyme.

Le mésophylle, bi-facial, comprend sous l'épiderme inférieur, deux assises de cellules palissadiques, au-dessous desquelles se trouve un parenchyme lacuneux sans caractère spécial. Le tissu palissadique se trouve interrompu, au niveau de la nervure médiane, par le collenchyme situé entre le faisceau libéro-ligneux et l'épiderme supérieur

Les deux épidermes sont constitués par des cellules régulières recouvertes d'une cuticule extrêmement épaisse ; de face, ces cellules ont leurs parois ondulées et épaisses. L'un et l'autre ne portent que de *très rares* poils tecteurs, coniques, unicellulaires. Par contre, ils sont pourvus, tous deux, de glandes sécrétrices extrêmement nombreuses, octocellulaires, sessiles et logées dans des dépressions du limbe.

Les stomates, moins nombreux à l'épiderme supérieur qu'à l'épiderme inférieur, sont très nettement exserts.

Richesse en essence et teneur en phénols du *Thymus Broussonnetii*.

Nous avons procédé à la distillation d'un lot de 8 kg.,820 de *Thymus Broussonnetii* récolté au moment de la floraison. La quantité d'essence recueillie a été de 78 gr., ce qui équivalait à un rendement de 0,884 %.

Cette essence, très limpide, de couleur brun-verdâtre, possède une odeur agréable, très accentuée, de marjolaine. Sa richesse en phénols totaux est de 57,23 % (1). Mais il ne nous a pas été possible d'en extraire le moindre cristal de thymol, ce qui nous amène à conclure, en tenant compte de l'observation de la page 17, que la proportion de carvacrol contenue dans l'essence de *Thymus Broussonnetii* doit être extrêmement élevée. Probablement même, cette dernière ne renferme-t-elle presque pas de thymol, et les 57,23 % de phénols totaux qu'elle contient sont-ils constitués, presque entièrement, par du carvacrol ?

(1) Une erreur typographique qui s'est glissée dans le Rapport de Mission du Professeur PERROT, indique 27,23 % au lieu de 57,23 %.

Thymus capitatus Hoff. et Link.

Syn.: *Satureia capitata* L. ; *Coridothymus capitatus* Reichb. ; *Thymus creticus* Brot.

En **Espagnol** : *Tomillo andaluz* ; *tomillo carrasqueño*.

En **italien** : *Timo capitato*.

L'essence de *Thymus capitatus*, qui est produite en Espagne sur une échelle de plus en plus grande, méritait d'être étudiée au point de vue de sa richesse en phénols, car non seulement elle est vendue comme « essence de thym », mais, l'espèce qui la fournit étant extrêmement abondante en Tunisie, il serait peut-être possible de créer, dans notre pays de protectorat, une petite industrie régionale.

Depuis longtemps, le *Thymus capitatus* est utilisé en thérapeutique ; on le connaissait autrefois sous le nom de thym de Crète (*Herba Thymi cretici*) et ses sommités fleuries figuraient même au Codex de 1818. Il est très commun dans toutes les régions chaudes de la zone méditerranéenne, où on le rencontre depuis le Maroc, l'Espagne et le Portugal, jusqu'à l'Égypte, la Palestine et l'Asie Mineure.

En Espagne, le *Thymus capitatus* est surtout abondant dans les provinces sud et sud-est de la péninsule et notamment dans celles de Grenade, Cadix, Séville, Huelva, Malaga et Cordoba. Il y fait d'ailleurs, comme nous l'indiquons plus haut, l'objet d'une industrie importante et l'essence qu'on en retire est principalement achetée par l'Amérique.

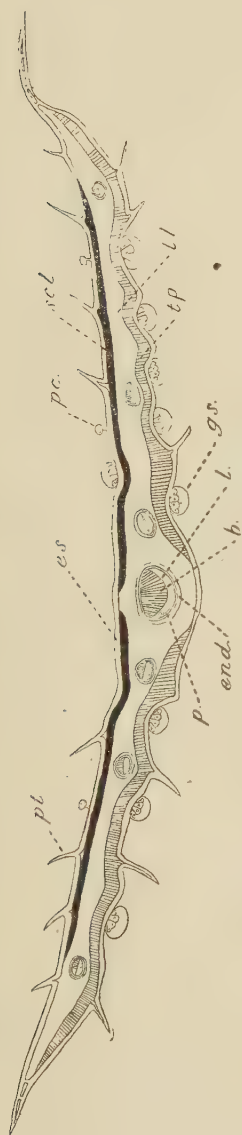
En Italie, il couvre des étendues immenses dans toute la région méridionale et, comme PALAZZO (1) l'a suggéré récemment, on pourrait avantageusement le récolter et le distiller en Sicile où il est particulièrement abondant dans les terrains secs et rocailleux.

Enfin, en Tunisie, il existe en grande abondance aux pieds des montagnes entre Hammam-Lif et Grombalia, dans tout le cap Bon, dans les Mogods, au Kef, à El-Djem, Oudnef, Gabès, Djebel Kérouta, etc... (2).

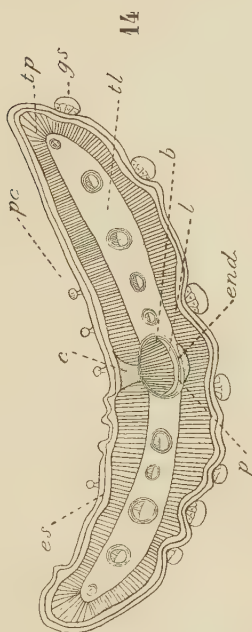
(1) PALAZZO (C.) — Le thymol et le carvacrol dans quelques Labiées italiennes, *Boll. della Assoc. ital. pro Pianta arom. med. ed altre utili*, Milan 1922, N° 8, pp. 144-153.

(2) D'après le Dr CUÉNON, in *Les plantes médicinales de Tunisie*, par CUÉNON, GUILLOCHON, LUCIANI, Tunis 1920.

16



15



14

Thymus capitatus Hoffm. et Link.

FIG. 14. — Coupe transversale schématique de la feuille.

FIG. 15. — Bractée.

FIG. 16. — Coupe transversale schématique de la bractée.

es, épiderme supérieur ; ei, épiderme inférieur ; b, bois ; l, liber ; p, péricycle ; end, endoderme ; tp, tissu palissadique ; μ , tissu lacuneux ; scl, assise sous-épidermique de cellules scléreuses ; c, collenchyme ; pt, poil tecteur ; pc, poil capité ; gs, glande sécrétrice.

Caractères botaniques du *Thymus capitatus*.

Le *Thymus capitatus* est un sous arbrisseau de port élégant, très rameux. Tandis que les rameaux de la base sont couchés sur le sol, les autres sont dressés et peuvent atteindre jusqu'à 35 cm. de hauteur.

La tige, légèrement pubescente, porte des feuilles sessiles, lancéolées, linéaires, très aiguës au sommet, oblongues et planes ; groupées par 3-4, ou bien en faisceaux à l'aisselle, pour les plus petites, ces feuilles, légèrement ciliées sur les bords, sont très fortement ponctuées en raison des nombreuses glandes sécrétrices incluses dans l'épiderme.

Les fleurs sont groupées en capitules terminaux globuleux ou plus souvent oblongs, d'un beau rose, dont l'ensemble donne un aspect si particulier à la plante. Elles sont protégées par de nombreuses bractées, imbriquées les unes sur les autres, de taille beaucoup plus considérable que celle des feuilles. Ces bractées (fig. 15) sont ovales, lancéolées vertes, très fortement ponctuées, glanduleuses et très abondamment ciliées sur leurs bords.

Le calice, beaucoup plus court que la corolle, est ovoïde dorsiventral, étant fortement applati et comprimé sur le dos (1). Sa lèvre supérieure est tridentée, la dent intermédiaire étant plus courte que les deux autres. Quant à la lèvre inférieure, elle est divisée en deux fines lanières.

La corolle, rose, trois fois plus large que le calice duquel elle sort presque entièrement, a sa gorge dilatée et sa lèvre supérieure étalée en forme de cœur. Les stigmates et les étamines sont très nettement exserts.

Etude anatomique de la bractée et de la feuille de *Thymus capitatus*.

Feuille. — Une coupe transversale (fig. 14) d'une feuille de *Thymus capitatus* permet de constater, au niveau de la nervure médiane, la présence d'un assez fort faisceau libéro-ligneux principal comprenant un massif ligneux très développé, à la partie inférieure duquel est accolée une mince couche de liber applati. Le massif ligneux est constitué de quelques vaisseaux seulement,

(1) C'est surtout en s'appuyant sur les caractères du calice que REICHENBACH a cru devoir sortir le *Thymus capitatus*, du genre *Thymus*, et créer pour cette seule et unique espèce le genre *Coridothymus*. Notamment, dans le genre *Thymus*, le calice est ovoïde cylindrique et non ovoïde-dorsiventral.

de faible diamètre et d'un parenchyme formé de 6 à 7 assises de cellules lignifiées.

Ce faisceau libéro-ligneux est entouré d'un péricycle constitué par une ou deux assises de cellules plus ou moins sclérifiées, particulièrement nettes à la partie inférieure, et, plus extérieurement, par un endoderme bien différencié.

De chaque côté du faisceau libéro-ligneux principal, le limbe est parcouru par 5 à 6 faisceaux secondaires.

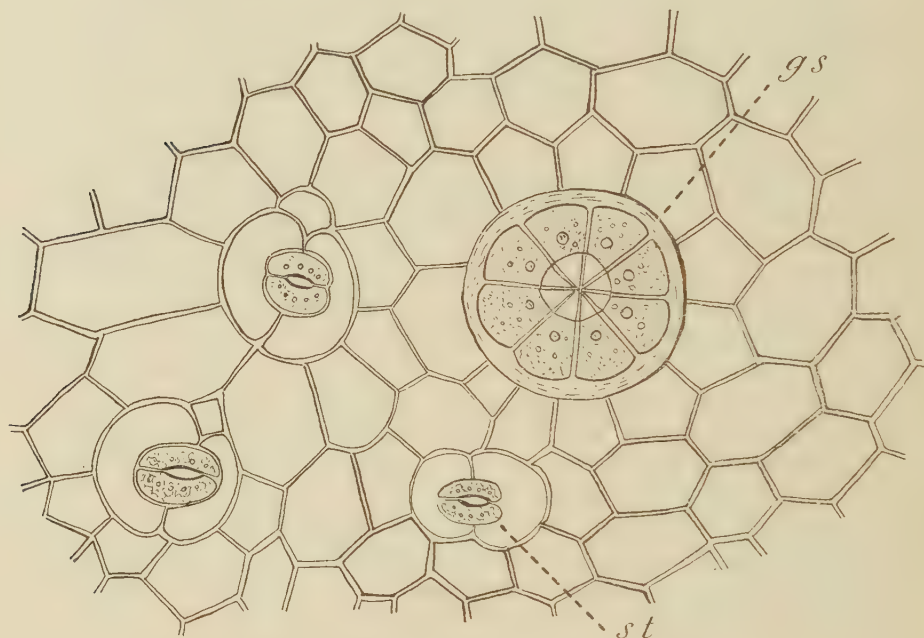


FIG. 17. — **Epiderme inférieure de la feuille de *Thymus capitatus*.**
gs, glande sécrétrice octocellulaire ; *st*, stomate.

Le mésophylle est hétérogène centrique. Il comprend, en effet, une assise de cellules palissadiques à la face supérieure de la feuille et une autre à la face inférieure. Entre ces deux assises est logé un tissu lacuneux sans caractère spécial.

L'assise palissadique de la face supérieure est interrompue, sur un faible espace, par un petit îlot de collenchyme qui va de l'épiderme jusqu'au péricycle.

Les deux épidermes sont constitués par des cellules polygonales légèrement allongées dans le sens tangentiel et à parois épaissies (fig. 17). Ils sont recouverts d'une cuticule de nature cellulosique, extrêmement développée, dont l'épaisseur est presque égale au diamètre longitudinal des cellules de l'épiderme. L'épiderme

inférieur est particulièrement riche en glandes sécrétrices octocellulaires, sessiles, logées dans des dépressions du limbe. A la face supérieure de la feuille on observe, au contraire, quelques poils sécréteurs capités, portés par un pédicelle unicellulaire et quelques rares poils tecteurs, courts, unicellulaires, coniques.

Sur les deux faces du limbe, on rencontre des stomates, exserts, présentant le caractère général des stomates des Labiées.

La structure anatomique qui vient d'être ainsi décrite est celle d'une grande feuille de *Thymus capitatus*. La structure des petites feuilles qui sont groupées en faisceaux à l'aisselle des grandes (voir p. 55) est à peu près semblable, sauf qu'on n'y trouve qu'un ou deux faisceaux secondaires de chaque côté du faisceau libéro-ligneux principal et qu'en outre le tissu palissadique est constitué, aussi bien à la face supérieure qu'à la face inférieure, par deux assises de cellules.

Bractées.— Les bractées florales (fig. 15), dont les dimensions sont environ doubles de celles des feuilles, diffèrent notablement de ces dernières dans leur structure anatomique.

La coupe transversale d'une bractée de *Thymus capitatus* (fig. 16) permet de constater l'absence de tissu assimilateur à la face supérieure. Ce tissu n'existe qu'à la face inférieure, où il est représenté par une seule rangée de cellules palissadiques. Par contre, immédiatement au-dessous de l'épiderme inférieur, se trouve une rangée de grosses cellules scléreuses, à parois fortement épaissies, à lumen étroit (fig. 16, *scl*).

Bien entendu, par suite de cette structure spéciale, les stomates sont uniquement localisés à la face inférieure de la bractée.

Les deux épidermes sont très riches en glandes sécrétrices sessiles, octocellulaires en poils sécréteurs capités, à pédicelle unicellulaire et en poils tecteurs coniques, unicellulaires. En outre, aux deux extrémités de la coupe, on voit un long et volumineux poil tecteur terminal, pluricellulaire, unisérié ; il correspond aux cils qui garnissent les bords de la bractée et dont il a été parlé page 55.

Rendement en essence et teneur en phénols du *Thymus capitatus*.

Jusqu'à ces toutes dernières années, la composition chimique de l'essence de *Thymus capitatus* semble avoir été très mal connue. GILDEMEISTER (1) rapporte les résultats d'une analyse

(1) GILDEMEISTER et HOFFMANN (*loc. cit.*, t. III, p. 533).

effectuée par SCHIMMEL et Cie et qui attribue à cette essence les caractères suivants : essence à odeur forte de thym, rappelant quelque peu celle de l'origan, poids spécifique 0,901, faible teneur en thymol, d'environ 6 % seulement ; il existe également un phénol liquide, qui doit être vraisemblablement le carvacrol :

L'an dernier, PALAZZO (1), en étudiant des essences de *Thymus capitatus* distillées en Sicile, indiquait que celles-ci renfermaient environ 75 % de composés phénoliques, presque entièrement constitués par du carvacrol ; en même temps, cet auteur signalait la grande différence qui existait entre ces résultats et ceux rapportés par GILDEMEISTER.

Nos recherches ont confirmé pleinement la manière de voir de PALAZZO ; et, de l'analyse de la Maison SCHIMMEL, nous n'avons pu vérifier qu'un point, à savoir que l'essence de *Thymus capitatus* rappelle, en effet, par son odeur, celle d'Origan.

Les thymes que nous avons étudiés provenaient de deux pays différents : d'Espagne (région de Malaga) et de Tunisie (2).

Thymus capitatus d'Espagne.

Un lot de 3 kilos 770 de plante entière fleurie a fourni à la distillation 39 grammes d'essence, soit un rendement de 1,034 %.

Le dosage de cette essence donne une teneur en phénols totaux de 63,98 %. Il a été impossible de faire cristalliser la moindre trace de thymol, ce qui porte à conclure que la proportion de carvacrol contenue dans cette essence est très élevée.

Thymus capitatus de Tunisie.

Le poids du lot distillé (plante entière fleurie) était de 4 kilos 800; la quantité d'essence recueillie a été de 90 gr. soit un rendement de 1,875 %.

La teneur en phénols totaux est de 52,91 %. En ce qui concerne la présence du thymol, la même remarque est à faire que pour l'essence d'Espagne.

Les essences de *Thymus capitatus* espagnoles et tunisiennes ont toutes deux une coloration orangé-foncé et une même odeur de thym et de marjolaine. Si la richesse en phénols totaux de l'essence de Tunisie est inférieure à celle de l'essence d'Espagne, on

(1) PALAZZO (*loc. cit.*, p. 148).

(2) Je tiens à remercier très cordialement, M. GUILLOCHON, Professeur à l'Ecole d'Agriculture Coloniale de Tunis et Secrétaire du Comité Tunisien des Plantes Médicinales, d'avoir bien voulu faire récolter un lot suffisant de *Thymus capitatus* pour nos recherches.

remarquera, par contre, que le thym récolté en Tunisie a donné un rendement en essence beaucoup plus élevé (1,875 ‰ contre 1,034 ‰). Il est vraisemblable d'admettre que, dans les deux cas, les phénols sont presque entièrement constitués par du carvacrol.

Autres plantes à Thymol.

Thymus vulgaris L.

C'est certainement parmi les plantes à thymol une de celles où la présence de ce corps ait été signalée depuis le plus longtemps. C'est en 1725, en effet, que NEUMANN décrivit le thymol sous le nom de *camphre de thym*.

Indigène dans tous les endroits secs et incultes de la zone Méditerranéenne, cette espèce se rencontre plus particulièrement au Portugal, en Espagne, en France, en Italie.

En Espagne, elle est très commune dans les provinces de Almería, Murcie, Grenade et Valence ; les montagnes environnantes de Murcie en sont couvertes ; aussi est-elle récoltée sur une vaste échelle dans cette dernière région, qui, en 1921, aurait produit 15.000 kilos d'essence de thym.

En France, on trouve le thym vulgaire dans tous les lieux arides du Midi, jusque dans les Hautes-Alpes, la Drôme, la Lozère et l'Aveyron. Il est extrêmement abondant dans les guarrigues du Languedoc où sa distillation, effectuée conjointement à celles d'autres espèces aromatiques, avait donné naissance à une industrie régionale fort prospère, notamment dans les départements du Gard et de l'Hérault.

Depuis ces dernières années, pour diverses raisons, qu'il ne nous appartient pas de développer ici, cette industrie a malheureusement périclité d'une façon fort sensible (1).

Dans le Midi de la France, les sommités fleuries de *Thymus vulgaris* donnent à la distillation un rendement commercial d'environ 0,4 ‰ en essence. Très appréciée sur le marché, pour son arôme agréable, celle-ci ne contient qu'une faible proportion de thymol : en moyenne 24 à 25 ‰.

Cette teneur relativement faible en thymol, comparée à celle des autres espèces étudiées au cours du présent travail, justifie la réserve que nous faisons tout au début de celui-ci sur l'utilisation

(1) Voir à ce sujet : JUILLET (A.) et RODIÉ (J.). — *Notice sur les Plantes Médicinales et à essences de l'Hérault*, Montpellier, 1920.

de l'essence du *Thymus vulgaris* de France comme source industrielle de Thymol.

L'essence italienne paraît, par contre, plus riche en thymol, si nous en croyons LEONE et ANGELESCU (1). En effet, d'après ces auteurs, du thym récolté en 1920, à Terracina, monte S. Stefano (province de Rome), a fourni un rendement en essence de 1,06 % avec une teneur moyenne en thymol de 37,8 %.

D'autre part, en étudiant la composition de l'essence de *Thymus vulgaris*, SCHIMMEL et C^o ont constaté que celle-ci était extrêmement variable (2). C'est ainsi que des thym d'origine française cultivés en Allemagne et distillés en vert ont donné une essence renfermant surtout du carvacrol ; par contre, des thym d'origine allemande distillés soit en vert, soit en sec ont fourni une essence renfermant uniquement du thymol.

Il est vraisemblable d'admettre qu'il existe pour l'espèce *Thymus vulgaris* plusieurs races physiologiques qui, par suite des conditions différentes de milieu dans lesquelles elles croissent, élaborent des essences à composition variable.



Cunila Mariana L.

Petite plante vivace, de la famille des Labiées, *Cunila Mariana* L. est connue aux Etats-Unis d'Amérique sous le nom de « stone mint » ou de « mountain dittany ». On la rencontre depuis la Nouvelle-Angleterre, jusqu'à la Georgie et l'Arkansas, dans les bois et sur les coteaux ombragés où le sol est rocailleux et sec. Elle fleurit de juin jusqu'à octobre.

MILLEMAN (3), en 1866, signala que l'essence de *Cunila Mariana* avait une odeur et une saveur analogues à celle de *Monarda punctata*, qu'elle était légèrement rubéfiante et qu'elle laissait déposer, par évaporation dans un verre de montre, une petite quantité de cristaux minuscules,

En 1893, SCHIMMEL et C^o (4) ont donné ainsi les caractères de l'essence de *Cunila Mariana* : Rendement : 0,7 % du poids de la plante sèche. Couleur : jaune-rougeâtre. L'essence a un poids spé-

(1) LEONE (P.) et ANGELESCU (E.). — L'essenza di *Thymus vulgaris* di origine italiana. *Gazzetta chim. ital.* Rome 1921, II, part. 2, p. 391.

(2) GILDEMEISTER et HOFFMANN. — (*Loc. cit.*, t. III, p. 528).

(3) MILLEMAN (Ch.). — On *Cunila Mariana*. *Am. Journ. of Pharm.*, Philadelphie, 1866, XIV, p. 495.

(4) BERICHT VON SCHIMMEL & C^o. — Leipzig, oct. 1893, p. 44.

cifique de 0,915 à 15° et une odeur forte de thym. Elle renferme 40 % d'un phénol qui est vraisemblablement du thymol.

*
* *

Satureia Thymbra L.

Cette Labiée, qu'on rencontre en Espagne, notamment en Andalousie, où elle est connue sous le nom d'« Oregano cabruno » y est utilisée à la fois comme aromate et comme plante stimulante et antiseptique.

SCHIMMEL et C^o ont étudié, en 1889, l'essence de *Satureia Thymbra* L. (1). Cette dernière, qui a une composition très voisine de l'huile essentielle de thym, a un poids spécifique de 0,905 et renferme 19 % de thymol,

*
* *

Un grand nombre d'essences d'Origan arrivent sur le marché en particulier d'Espagne, de Dalmatie, de Chypre, de Syrie et suivant leur provenance, elles présentent les compositions les plus diverses. Il se produit pour elles ce qui a déjà été constaté chez les huiles essentielles de thym : les unes renferment du carvacrol ; les autres du thymol, d'autres enfin un mélange de ces deux phénols.

Il est probable que la récolte des plantes, dont elles proviennent, est pratiquée sans soins, et que fréquemment on distille, en même temps, au moins deux espèces voisines, ce qui explique la diversité de composition de ces essences. C'est ainsi que l'*Imperial Institute* a reçu de Trieste, comme matériel servant à la préparation de l'essence d'origan du même nom, en 1907, *Origanum Onites* L. et, en 1911, *Origanum hirtum* Link (2). Aussi a-t-on cherché au cours de ces dernières années, à élucider la question de l'origine botanique des diverses essences d'Origan du commerce.

*
* *

Origanum floribundum Munby.

En 1902, BATTANDIER (3) signalait comme nouvelle source de thymol, une Labiée des montagnes de l'Algérie, *Origanum flori-*

(1) BERICHT VON SCHIMMEL & C^o. — Leipzig, octobre 1889, p. 55.

(2) Trieste Origanum and white Thyme. *Bull. of Imp. Inst.*, Londres, 1911, IX, p. 388.

(3) BATTANDIER. — Nouvelle source de thymol. *J. Ph. et Ch.* Paris, 1902, 16, 6^e s., p. 536.

bundum Munby (= *O. cinereum* de Nöé). Traitée par des solutions alcalines, l'essence que cette espèce renferme en abondance, cède à celle-ci, environ le quart de son volume en phénol. Le mélange phénolique, isolé et convenablement concentré, cristallise presque totalement si on le touche avec un cristal de thymol. Il ne reste qu'une petite quantité de liquide brun et incristallisable qui paraît être constitué surtout par du carvacrol. L'essence d'*Origanum floribundum* renferme donc environ 25 % de thymol.

Si le fait d'avoir trouvé le thymol dans une espèce du genre *Origanum* était intéressant, du moins BATTANDIER concluait-il qu'au point de vue pratique cette constatation était moins importante, la plante, bien que très riche en essence, étant peu abondante.

Nous ajouterons qu'en comparaison des autres espèces étudiées au cours du présent travail, la teneur en thymol de l'*Origanum floribundum* est trop faible pour pouvoir songer à utiliser cette espèce comme source industrielle de ce phénol.

*
* *

Origanum vulgare L.

L'essence d'*Origanum vulgare* L. (= *O. creticum* L.) n'était jusqu'ici que d'un intérêt médiocre pour le commerce des huiles essentielles. Mais des recherches effectuées tout récemment, notamment par ANGELESCU, viennent d'attirer l'attention sur elle.

La première analyse de cette essence paraît avoir été donnée par JAHNS en 1880 qui a signalé dans cette dernière la présence de deux phénols, mais dans une proportion insignifiante (environ 1 %).

Plus tard, en 1905, UMNEY et BENNETT, examinant une essence d'Origan de Sicile, y trouvaient 44 % de phénols principalement constitués par du carvacrol.

PALAZZO (1) a pu constater une richesse égale en carvacrol dans une essence d'*Origanum vulgare* provenant de la distillation de plantes récoltées dans la province de Salerne. Par contre, son collaborateur, le Professeur PATERNO, en distillant des sommités fleuries d'*Origanum vulgare* récoltées en Sicile, a obtenu une essence renfermant 50 % de phénols presque exclusivement composés de thymol.

Tout récemment ANGELESCU (2) a confirmé ces derniers résultats. Etudiant la composition de l'essence d'*Origanum vulgare* de trois sources différentes, il a, chez toutes, caractérisé la présence du

(1) PALAZZO (*loc. cit.* p. 145).

(2) ANGELESCU (E.).— Su varie essenze di *Origanum vulgare* raccolto in diverse regioni d'Italia, *Gazetta chim. ital.* Rome 1922, L. II, part I, fasc. 2, p. 157.

thymol. Et, avec les plantes originaires de Sicile, il a obtenu un rendement en essence de 1,106 % de la plante entière avec une teneur en thymol de 50%. De telle sorte que l'*Origanum vulgare* L. de Sicile doit être classé, désormais, parmi les espèces particulièrement riches en thymol.

*
* *

Origanum hirtum Link.

Cette espèce, considérée comme source de l'essence d'Origan de Trieste, se rencontre en abondance en Crète et dans les îles de la côte Dalmate. En 1911, l'*Imperial Institute*, ayant eu l'occasion de recevoir du Musée commercial de Trieste un lot d'*Origanum hirtum* récolté en Dalmatie, en confia l'examen au Dr S. S. PICKLES (1). Les résultats indiqués par celui-ci sont les suivants : rendement 3,3 % d'une essence jaune pâle, à odeur prononcée de thym, à saveur brûlante ; poids spécifique à + 15° C = 0,9440. Pourcentage des phénols totaux (2) = 64,4 % en volume, 66-67 % en poids. Ces phénols sont constitués en grande partie par du thymol.

Le Dr GIESZLER (3), conservateur à l'Institut Botanique de l'Université de Leipzig, étudiant la même année trois essences originaires des îles Dalmates de Curzola et Lissa, et provenant de la distillation de l'*Origanum hirtum* Link. var *α albiflorum*, a trouvé une teneur en thymol variant de 51 à 60 %.

*
* *

Origanum Maru L.

Indigène dans toute la région du bassin oriental de la Méditerranée, surtout abondante en Syrie, Palestine et Tripolitaine, cette Labiée fournit à la distillation l'essence d'Origan de Syrie.

La composition de cette dernière est extrêmement variable ; elle renferme de 57 à 74 % de corps phénoliques qui seraient, d'après SCHIMMEL (4), constitués en grande partie par du thymol.

(1) *In Proc. Chem. Soc.* Londres 1911, 27, 284, d'après *Bull. of Imp. Inst.* Londres 1911, IX, p. 388.

(2) Calculé d'après le procédé de GILDEMEISTER.

(3) GILDEMEISTER et HOFFMANN (*loc. cit.*, t. III, p. 517).

(4) BERICHT VON SCHIMMEL & Co, Leipzig, Avril 1907, p. 102.

**Tableau comparatif des rendements en essence et des teneurs en phénols
des principales plantes à thymol.**

DÉNOMINATION SCIENTIFIQUE de la plante	Origine de l'échantillon étudié	Partie de la plante distillée	Rendement en essences	Richesse de l'essence	
				en phénols totaux	en thymol cristal- lisable
			0/0	0/0	0/0
<i>Carum copticum</i> Benth. (Ajowan) (<i>Ombellifères</i>) (1)	Indes angl.	graines	3-4	»	45-50
	Seychelles	—	9	»	38
	Montserrat	—	3,1	»	54
	Miltitz (Saxe)	plante entière	0,12	»	1
<i>Thymus Zygis</i> L.	Espagne	plante fleurie	1,048	74,11	51,18
<i>Ocimum gratissim.</i> L.	Côte-d'Ivoire	tiges et feuilles	0,60	56,29	39,15
	Seychelles	feuilles	0,50	62	?
	Seychelles	sommités fleur.	0,45	52	?
<i>Ocimum viride</i> Wild.	Sierra-Leone	feuilles	0,35	»	32
	Seychelles	—	»	»	37
<i>Mosla japonica</i> Maxim.	Japon	sommités fleur.	1,3	»	50
<i>Monarda punctata</i> L.	Etats-Unis d'Amér.	—	0,30-0,40	72-74	64,3
	Montserrat	feuilles	0,27	60-4	44
<i>Thymus capitatus</i> Hoffm. et Link.	Espagne	plante fleurie	1,034	63,98	?
	Tunisie	—	1,875	52,91	?
<i>Thymus Brousson-</i> <i>netii</i> Boiss.	Maroc	—	0,884	57,23	?
<i>Thymus vulgaris</i> L.	France	—	0,4-0,5	»	20-30
<i>Cunila Mariana</i> L.	Etats-Unis d'Amér.	plante entière	0,7	40	?
<i>Satureia Thymbra</i> L.	Espagne	—	»	»	19
<i>Origanum vulgare</i> L.	Sicile	plante fleurie	1,106	»	50
<i>Origanum hirtum</i> Link var. α <i>albiflorum</i>	Dalmatie	plante entière	3,3	66-67	51-60
<i>Origanum Maru</i> L.	Syrie	—	»	57-74	?
<i>Origanum floribundum</i> Munby	Algérie	—	»	»	25

(1) Exception-faite de l'Ajowan, toutes les plantes indiquées dans ce tableau appartiennent à la famille des **Labiées**.



Pl. I. — *Thymus Zygis* L. var. α -*gracilis* Boissier (Réduit de 1/2).



PL. II. — *Ocimum gratissimum* L. (Réduit de 1/3).



Pl. III. — *Mosla japonica* Maximow. (Réduit de $\frac{1}{4}$).



PL. IV. — *Thymus Broussonnetii* Boissier (Réduit de 1/2).

CONCLUSIONS

Le tableau qui précède constitue, en quelque sorte, un résumé schématique du présent Travail. Il permet tout d'abord de constater que l'on connaît actuellement plus d'une douzaine de plantes renfermant des essences à teneur notable en thymol, teneur qui va de 19 %, pour l'espèce la moins riche (*Satureia Thymbra* L.), jusqu'à 64,3 % (variétés sélectionnées de *Monarda punctata* L.). Toutes ces plantes, sauf une, l'*Ajowan*, appartiennent à la famille des Labiées, et dans cette famille, les espèces à thymol se rencontrent plus particulièrement dans les genres *Thymus*, *Origanum* et *Ocimum*.

Enfin, on peut remarquer qu'en plus de l'*Ajowan* et de *Monarda punctata*, considérés jusqu'ici, dans les ouvrages classiques, comme seules sources industrielles du thymol, six autres espèces renferment ce phénol dans des proportions élevées : *Thymus Zygis* L.; *Mosla japonica* Maxim., *Origanum hirtum* Link., var. *albiflorum*, *Origanum vulgare* L., *Ocimum gratissimum* L. et *Ocimum viride* Wild.

Nos recherches ont plus particulièrement porté sur huit espèces que nous avons étudiées au double point de vue de leurs caractères botaniques et de leur richesse en thymol.

L'étude histologique des feuilles et pétioles de ces espèces n'a fourni aucun caractère qui s'éloigne de ce que l'on sait de la structure générale des Labiées (disposition des stomates et de leurs cellules annexes, poils tecteurs, glandes sécrétrices, etc.).

Il est cependant intéressant de signaler que l'étude comparative des sections transversales des feuilles et pétioles de l'*Ocimum viride* Wild. et de l'*Ocimum gratissimum* L. a permis de différencier ces deux espèces, l'une de l'autre. La section transversale de la nervure médiane et du pétiole est, à la face supérieure, creusée en gouttière chez l'*Ocimum gratissimum* et presque plane chez l'*Ocimum viride*. En outre, les cellules de l'épiderme supérieur de cette dernière espèce sont deux fois plus petites que celles de l'*Ocimum gratissimum*.

D'autre part, la structure toute spéciale de la feuille de *Thymus capitatus* Hoffm. et Link. mérite également d'être mentionnée.

La mésophylle, chez cette dernière espèce, présente sur les deux faces une assise très développée de cellules chlorophylliennes, ce qui fait ranger cette dernière plante dans le groupe de celles à feuilles à structure nettement centrique. Or, les autres espèces de *Thymus* étudiées dans ce travail, et d'une façon générale toutes les plantes appartenant au genre *Thymus* possèdent un mésophylle bifacial. Par ce caractère, le *Thymus capitatus* se distingue donc des autres espèces du genre *Thymus*. Et ainsi, ce fait semble constituer un argument de plus en faveur de la thèse de REICHENBACH qui, comme je l'ai rappelé, crut devoir sortir l'espèce en question du genre *Thymus* et créer, pour elle seule, le genre *Coridothymus* (*Thymus capitatus* Hoffm. et Link. = *Coridothymus capitatus* Reich.). De plus, l'assise de cellules scléreuses que nous avons signalée sous l'épiderme supérieur de la bractée de cette même espèce, paraît être également caractéristique du *Thymus capitatus*. Cette assise n'existe pas, ainsi que nous avons pu nous en rendre compte, dans la bractée du *Thymus Zygis* L. ni dans celle du *Thymus Broussonnetii* Boiss., et il serait intéressant d'étudier comparativement la structure anatomique des bractées des différentes espèces du genre *Thymus* afin de vérifier si, là encore, on ne se trouve pas en présence d'un caractère spécifique du *Thymus capitatus*.

Quant à la richesse des différentes espèces en thymol, nos recherches ont plus spécialement porté sur quatre plantes jusqu'alors incomplètement, ou pas du tout étudiées à ce point de vue : *Thymus Zygis* L., *Ocimum gratissimum* L., *Thymus Broussonnetii* Boiss. et *Thymus capitatus* Hoffm. et Link.

Ces deux dernières espèces ne renferment pas de thymol ; par contre nous y avons trouvé une teneur en phénols très élevée : 57,23 % pour le *Thymus Broussonnetii*, 63,98 et 52,91 % pour le *Thymus capitatus*. Il semble bien que ces phénols soient presque entièrement constitués par du carvacrol, ce qui fait que les essences de ces deux espèces sont susceptibles d'intéresser le commerce des huiles essentielles.

L'essence de *Thymus capitatus* n'est-elle d'ailleurs pas produite en grande quantité en Espagne d'où elle est expédiée par milliers de kilos sur l'Amérique ?

On est donc en droit de conclure qu'il serait possible de distiller en Tunisie le *Thymus capitatus* et au Maroc le *Thymus Broussonnetii*, pays où ces plantes sont respectivement abondantes, afin d'amener sur le marché une essence de thym à haute teneur en

phénols, capable de rivaliser avec certaines essences espagnoles.

Quant au *Thymus Zygis* et à l'*Ocimum gratissimum*, ces deux espèces méritent d'être désormais considérées comme *excellentes sources industrielles de thymol*, et de prendre ainsi place à côté de l'*Ajowan*.

Pour le *Thymus Zygis*, nous avons montré que c'était l'espèce productrice de l'essence de thym espagnol extrêmement riche en thymol, bien connue des acheteurs et citée dans les ouvrages spéciaux, mais dont on ignorait jusqu'ici l'origine botanique. Les échantillons de *Thymus Zygis* étudiés ont fourni un rendement en essence de 1.048 % avec une richesse en thymol cristallisable de 51,48 %.

Quant à l'*Ocimum gratissimum*, il présente d'autant plus d'intérêt, que c'est actuellement la seule plante à thymol qui soit cultivée aussi bien sur notre sol, que sur celui de nos colonies.

La teneur de son essence en thymol s'élève, d'après nos recherches, à 39,45 %.

Telles sont les conclusions d'ordre scientifique qui semblent devoir être dégagées de ce Travail. Elles en appellent d'autres, mais cette fois d'un caractère purement économique, qui méritent, à notre avis, d'être également exposées.

La France ne produit pratiquement pas de thymol. L'an dernier, elle en a importé, d'après les statistiques officielles douanières 2.527 kilogs. L'importance de ce chiffre démontre la possibilité de créer une véritable petite industrie française du thymol, qui, rattachée à une fabrique d'huiles essentielles, petite ou grande, aurait de fortes chances de se développer avec succès. Non seulement, elle devrait être en mesure de satisfaire à la consommation nationale, mais elle pourrait même prétendre, dans des conditions favorables, à devenir exportatrice. Songeons que les Indes anglaises ont pu exporter de juin 1917 à juin 1919, c'est-à-dire en deux ans, près de 5.000 kilogs de thymol.

Mais, la question se pose de savoir quelles sont, parmi toutes les espèces étudiées, celles qu'il conviendrait d'exploiter pour alimenter cette industrie ? A notre avis, trois plantes méritent seulement d'être prises en considération, dans ce but : le *Thymus Zygis*, l'*Ocimum gratissimum* et l'*Ajowan*.

Toutes trois ont en effet prouvé que leur exploitation commerciale était réalisable avec bénéfice. Les essences de *Monarda punctata* et de *Mosla japonica* ont évidemment une teneur très élevée en thymol, mais ces deux plantes n'ont pas été, semble-t-il exploitées *industriellement* en dehors de leur pays d'origine ; de sorte qu'actuellement on ne peut songer à les cultiver en France et

dans les colonies. Quant aux autres espèces citées dans ce Travail, et notamment celles appartenant au genre *Origanum*, il n'a jamais été effectué sur elles que des essais de Laboratoire qui demanderaient désormais d'être entrepris sur une plus grande échelle.

L'Ajowan, dont l'ère de dispersion géographique est si étendue, pourrait vraisemblablement être introduit avec succès dans notre Afrique du Nord où des espèces très voisines existent déjà (*Ptychotis ammoides*, *Ptychotis atlantica*, etc.).

Mais, en tenant compte des essais qui ont été effectués aux îles Seychelles et qui ont fourni des graines à rendement plus élevé que celles des Indes, on doit entrevoir la possibilité de cultiver l'Ajowan dans certaines de nos possessions de l'Océan Indien (Madagascar, Comores, Réunion).

Dans ce cas, au lieu d'expédier sur la métropole les graines récoltées, il serait plus judicieux de les distiller sur place, afin de réduire les frais de transport ; sinon, ceux-ci grèveraient si lourdemment le produit que la lutte contre la concurrence anglo-indienne serait pour le moins très difficile.

Quant au *Thymus Zygis*, dont l'utilisation de l'essence comme source de thymol ne remonte qu'à quelques années, il est en passe de prendre une importance aussi grande que l'Ajowan dans la préparation de ce corps. Nous croyons qu'il y aurait intérêt d'ententer l'introduction dans nos garrigues du Languedoc, afin de posséder en France une plante susceptible d'être exploitée pour l'industrie du thymol. La nécessité de cette introduction se justifierait déjà, d'ailleurs, par la possibilité de distiller une essence à teneur plus riche en thymol que celle de notre thym vulgaire et partant plus recherchée sur le marché.

Enfin, l'*Ocimum gratissimum*, dont la culture a donné déjà de si bons résultats à la Côte d'Ivoire, pourrait être propagé dans toute cette région ainsi qu'en Guinée. Mais, afin d'obtenir des rendements encore plus élevés, il conviendrait, dès maintenant, d'étudier l'action sur la richesse en essence et la teneur en thymol de cette plante, des conditions extérieures (nature du terrain, exposition, fumure, engrais), et voir si l'on ne pourrait établir par des sélections appropriées des races industrielles comme cela a été réalisé en Amérique pour le *Monarda punctata*.

*
* *

Telles sont les suggestions que cette étude permet de faire. Elles rentrent dans le cadre des idées que le Professeur PERROT ne cesse de répandre au cours de l'active propagande qu'il dirige comme

Président du Comité Interministériel des Plantes Médicinales et à essences. Plus que jamais, nous devons rassembler nos efforts pour parvenir à tirer de notre sol les matières premières dont nos industries ont besoin. La lutte économique qui se poursuit actuellement de peuple à peuple n'est pas moins âpre que la guerre. Nous n'en sortirons finalement vainqueurs que si, par une mise en valeur rationnelle des richesses de notre pays et de notre domaine colonial, nous parvenons à réduire à l'extrême limite nos achats à l'étranger.

Vu bon à imprimer :
Le Président de Thèse,
Em. PERROT.

Vu :
Le Doyen,
M. RADAI

Vu et permis d'imprimer :
Le Recteur de l'Université de Paris
P. APPELI.

INDEX BIBLIOGRAPHIQUE.

- ANGELÉSCU (E.). — Su varie essenze di *Origanum vulgare* raccolto in diverse regioni d'Italia. *Gazetta chim. ital.*, Rome 1922, LII, part. I, fasc. 2, p. 157.
- BATTANDIER. — Nouvelle source de Thymol, *J. Ph. et Ch.*, Paris 1902, 16, 6^e s., p. 536.
- BLAS LAZARO E IBIZA. — *Compendio de la flora española*. Madrid 1921, 3 vol., avec nombreux dessins.
- BOISSIER (E.). — *Voyage botanique dans le midi de l'Espagne pendant l'année 1837*. Paris, 1839-1845, 2 vol., in-4^o, 208 pl.
- CANALS. — Influence des radiations solaires sur la formation de l'essence dans la plante. *Bull. sc. de la Maison Roure-Bertrand*. Grasse, 1921, 4^e s., n^o 3, pp. 8-14.
- COLLIN (Eug.) et PERROT (Em.). — *Les résidus industriels utilisés par l'Agriculture comme aliments et comme engrais*. Paris, 1904, 299 p. avec nombreux dessins. J.-B. Baillière, éd.
- CURTESI (Dott. Fabrizio). — La crisi delle piante medicinali e le nostre colonie africane. Rome, 1919. *Istituto coloniale italiano*. Memorie e monografie coloniali (serie economica), n^o 3, 36 p.
- DORRONSORO Y UCELAYETA (B.). — *Estudio Químico de esencias naturales españolas*. Madrid, 1919. Imprenta clasica española.
- FLUCKIGER (F.-A.) et HANBURY (D.). — *Histoire des drogues d'origine végétale* (trad. française du D^r DE LANESSAN). Paris, 1878, 2 vol. in-8 avec 320 fig. Doin, éd.
- FRANCHET (A.) et SAVATIER (Lud.). — *Enumeratio Plantarum in Japonica sponte crescentium hucusque rite cognitarum adjectis descriptionibus specierum pro regione novarum quibus accedit determinatio herbarium in libris japonicis So Mokou Zoussetz xylographice delineatarum*. Parisiis, Apud. F. Savy, bibliopolam, 1875, 2 vol. in-8.
- GILDEMEISTER (E.) et HOFFMANN (F.). — *Les huiles essentielles*. 2^e édition par GILDEMEISTER (E.), 3 vol., t. I et II, trad. française de LALOUÉ (G.), Paris, 1912, J.-B. Baillères et fils, éd., t. III, Leipzig, 1916, Stackmann, éd.
- GOULDING (E.) et P'ELLY (R.-G.). — Essence d'*Ocimum viride* de l'Afrique occidentale. *Proceedings of the Chemical Society*. Londres, 1908, 24, pp. 63-63.
- GRAY (ASA). — *Manual of the Botany of the Northern United States*. New-York, 1856, 2^e éd., 1 vol. in-8, 14 pl., 739 pages. George P. PUTMANN et C^o.

- HOLMES (E.-M.). — Spanish oil of Thyme. *The Perfumery and essential oil record*. Londres, 1920, vol. II, octobre, p. 338.
- HOOD (S.-C.). — Commercial production of thymol from Horsemint (*Monarda punctata*), *Bull.* n° 372, U. S. Department of agriculture. Washington, 1916.
- KIRTIKAR (K.-R.) et BASU (B.-D.). — *Indian medicinal plants*. Allahabad, 1918, publié par Sudhindra Natto Basu Panini Office Bhuwaneswari Asrama Bahadurgang, 2 vol. in-4° de texte, 1 vol. de planches.
- KREMERS (Ed.) et SCHREINER (O.). — Quantitative estimation of phenols in volatile oils. Thymol and Carvacrol. *Pharmaceutical Review*, Milwaukee, 1896, t. 14, p. 221-223.
- LAKHAMI, SUDBOROUGH et WATSON. — Préparation du thymol à l'aide de l'Ajowan. *Journ. Indian Inst., sc.*, 1921, 4, pp. 59-84.
- MASTBAUM Dr (Hugo). — Über spanisches Thymianöl und die Bestimmung des Thymols. *Chemiker Zeitung*, Cöthen, 1921, 2, p. 18.
- MAXIMOWICZ (C.-J.). — Diagnoses plantarum novarum Japoniæ et Mandshuriæ. *Mélanges biologiques Ac. des Sciences de St-Peters*. 1873-1877, t. 9, p. 437.
- MILLEMAN (Ph.). — On Cunila Mariana. *Am. Journ. of Pharm.* Philadelphie, 1866, XIV, p. 495.
- NICHOLSON (G.). — *Dictionnaire pratique d'Horticulture et de Jardinage*, traduit de l'anglais par MOTTET (S.). Paris, 1895-1896, 5 vol., Librairie agricole de la Maison rustique.
- PALAZZO (C.). — Le thymol et le carvacrol dans quelques Labiées italiennes. *Boll. della Assoc. ital. pro Pianta arom., med. ed altre utili*. Milan, 1922, n° 7, pp. 128-134, et n° 8 pp. 144-153.
- PERROT (Em.) et GENTIL (L.). — *Sur les productions végétales du Maroc, la constitution du sol marocain et les influences climatologiques*, Notice n° 10 des travaux de l'Office National des Matières Premières Végétales.. Paris, 1921, 170 p. avec 1 carte géologique, 7 fig. et 8 pl., Larose, éd.
- PHILLIPS (M.) et GIBBS (H.-D.). — A synthesis of thymol from p. cymene. *Journ. Indus. and Engin. Chem.* Easton, Pa, 1920, 12, n° 8, pp. 733-734.
- POBEGUIN (H.). — *Essai sur la flore de la Guinée française*. Paris, 1906, 1 vol. in-8, 392 pp. avec 80 pl., Challamel, éd.
- RECLAIRE (A.) et ROCHUSSEN (F.). — Fortschritte auf dem Gebiete der Chemie der Terpene und der ätherischen Öle für die Jahre 1916-1919. *Chemiker Zeitung*. Cöthen, nov. 1920, n° 137, 139, 140, 141, 142, 144 et déc. 1920, n° 149.
- ROLET (A.). — Sur l'essence de thym et le thymol. *La Parfumerie Moderne*. Lyon XIV^e ann., n° 10, p. 221.
- SCHIMMEL. — Bericht von Schimmel & Co, in Miltitz bez. Leipzig, über ätherische Öle, Riechstoffe, etc... 1918, 1919, 1920, 1921, 1922.
- SCHROETER (H.-J.-M.). — Analyse de l'huile essentielle de *Monarda punctata*. *Am. Journ. of Pharm.* Philadelphie, 1888, 60, pp. 113-121.

- SHERK (C.-L.). — Urethanes of Thymol and Carvacrol. *Am. Journ. of Pharm.* Philadelphie, 1921, **93**, n° 2, pp. 115-125, n° 3, pp. 207-222.
- SHERK (C.-L.). — Thymol and Carvacrol problems. *Am. Journ. of Pharm.* Philadelphie, 1921, **93**, n° 4, pp. 8-18.
- STYGER (Jos.). — Beiträge zur Anatomie der Umbelliferenfrüchte. *Schweiz. Apoth. Ztg.* Zürich, 1919 **57**, p. 95.
- TATSUO KARIYONE et KENJIRO ATSUMI. — Dosage du Thymol dans l'essence de *Mosla japonica*. *Yakuga kuzasshi*, 1920, 462^e d'après le *J. de Ph. et Ch.*, Paris, 1921, XXIII, 7^e s., p. 148.
- TOUSSAINT (l'abbé). — *Flores comparées comprenant tous les genres européens et américains, les Espèces communes aux deux contrées, naturalisées et cultivées*. Paris, 1912, 1 vol. in-8. Librairie Scientif. A. Hermann et Fils.
- WATT (Sir George). — *The commercial products of India*. Londres 1908, 1 vol., in-8°, 1190 pp., J. Murray, éd.
- WILLKOMM (M.). — *Grundzüge der Pflanzen Verbreitung auf der iberischen Halbinsel*. Engler und Drude. Die Vegetation der Erde. Leipzig, 1896, in-8°.
- WILLKOMM (M.) et LANGE (J.). — *Prodromus Floræ hispanicæ seu synopsis methodica omnium plantarum in Hispania sponte nascentium vel frequentius cultarum quæ innotuerunt*. Stuttgartiæ. Sumtibus E. Schweizerbart (E. Kock), 1870-1880, 3 vol. in-8° et *Supplementum. Prodromi Floræ hispanicæ*. 1 vol. 1893.

Articles sur les plantes à thymol dont les auteurs ne sont pas dénommés.

- Trieste Origanum and white Thyme. *Bull. of the Imp. Inst.*, Londres, 1911, **IX**, p. 388.
- Etude de deux essences originaires de l'Afrique occidentale. — Essence d'*Ocimum gratissimum*. — *Bull. sc. et industriel de la Maison Roure-Bertrand Fils*. Grasse 1913, 3^e s., n° 8, p. 21.
- The present scarcity of the antiseptic thymol. — *Bull. of the Imp. Inst.* Londres 1914, **XII**, p. 599.
- The Manufacture of thymol. — *Pharm. Journ.* Londres, 1915, **94**, n° 2675, p. 114.
- Thymol from Indian ajowan seed. — *Bull. of the Imp. Inst.*, Londres, 1916, **XIV**, p. 225.
- Thymol from *Monarda punctata* in United States. *Bull. of the Imp. Inst.* Londres, 1916, **XIV**, p. 295.
- A possible new source of thymol. — *Bull. of the Imp. Inst.* Londres, 1917, **XV**, p. 322.
- Economic products of Cyprus. — *Bull. of the Imp. Inst.* 1917, **XV**, pp. 297-313.
- Ajowan Seed and Thymol. — *Bull. of the Imp. Inst.* Londres, 1918, **XVI**, n° 1, p. 30.
- Aromatic oils from Seychelles. — *Bull. of the Imp. Inst.* Londres, 1918, **XVI**, p. 32.

- Monarda and Thymol (in Third Report of the pharmaceutical experiment Station). — *Bull. of the University of Wisconsin*, n° 977, general Series 761, 1919. Madison, Wisconsin.
- A new source of thymol. — *Bull. of the Imp. Inst.* Londres, 1920, **XVIII**, n° 3, p. 348.
- Spanish Thyme. — *Chemist and Druggist*. Londres 1920, **XCIII**, n° 2 112. p. 59.
- Synthetic thymol—Details of U. S. Patent for manufacture. — *The Perfumery and essential oil Record*. Londres, 1920, **XIII**, n° 11, p. 335.
- Essenze di Mosla. — *Rivista ital. delle essenze e profumi*. Milan 1920, An. II, n° 11, p. 132.
- The history of *Carum copiticum*. — *Pharm. Journ.* Londres, 1922, **108**, n° 3.062, p. 540.
-

ERRATUM.

Page 25, dernière ligne, au lieu de xérophytique, lire : xérophile.

TABLE DES MATIERES.

	Pages
INTRODUCTION	1
CHAPITRE PREMIER.— Préparation du thymol.....	7
1° Préparation à l'aide des essences de certaines plantes..	7
2° Préparation par voie de synthèse	10
CHAPITRE II.— Dosage du thymol dans les essences	13
A.— Examen critique des procédés employés.....	13
B.— Procédé spécial de dosage des essences à thymol.	16
1.— Dosage des phénols totaux exprimés en thymol.....	16
2.— Dosage du thymol.....	16
CHAPITRE III.— Etude monographique des plantes à thymol...	18
Ajowan (<i>Carum copticum</i> Benth.).....	18
Caractères botaniques de l'Ajowan	19
Culture de l'Ajowan	21
Richesse en essence et teneur en thymol de l'Ajowan..	21
<i>Thymus Zygis</i> L.....	22
Etude botanique du <i>Thymus Zygis</i> L.....	23
Etude anatomique de la feuille de <i>Thymus Zygis</i> L.	
var. <i>α gracilis</i> Boiss.....	25
Richesse en essence et teneur en thymol du <i>Thymus</i>	
<i>Zygis</i> var. <i>α gracilis</i> Boiss.....	26
<i>Ocimum gratissimum</i> L.....	29
Etude botanique de l' <i>Ocimum gratissimum</i> L.....	29
Culture de l' <i>Ocimum gratissimum</i> L.....	33

Rendement en essence et teneur en thymol de l' <i>Ocimum</i> L.....	34
<i>Ocimum viride</i> Willd.....	35
Culture de l' <i>Ocimum viride</i> Wild	39
Richesse en essence et teneur en thymol de l' <i>Ocimum viride</i>	39
<i>Mosla japonica</i> Maxim	40
Etude anatomique du pétiole et de la feuille de <i>Mosla japonica</i> Maxim.....	40
Rendement en essence et teneur en thymol de <i>Mosla japonica</i>	45
<i>Monarda punctata</i> L.....	46
Caractère botanique de <i>Monarda punctata</i> L.....	47
Culture de <i>Monarda punctata</i> aux Etats-Unis	47
Rendement en essence et teneur en thymol de <i>Monarda punctata</i>	49
<i>Thymus Broussonnetii</i> Boiss.....	49
Etude anatomique de la feuille de <i>Thymus Broussonnetii</i>	50
Richesse en essence et teneur en phénols du <i>Thymus Broussonnetii</i>	51
<i>Thymus capitatus</i> Hoffm. et Link.....	52
Etude anatomique de la bractée et de la feuille de <i>Thymus capitatus</i>	52
Rendement en essence et teneur en phénols du <i>Thymus capitatus</i>	57
Autres plantes à thymol.....	59
<i>Thymus vulgaris</i> L	59
<i>Cunila Mariana</i> L	60
<i>Satureia Thymbra</i> L.....	61
<i>Origanum floribundum</i> Munby	61
<i>Origanum vulgare</i> L.....	62
<i>Origanum hirtum</i> Link.....	63
<i>Origanum Maru</i> L.....	63

Tableau comparatif des rendements en essence et des teneurs en phénols des principales plantes à thymol....	64
CONCLUSIONS.. .. .	65
INDEX BIBLIOGRAPHIQUE	71

IMPRIMERIE ET LITHOGRAPHIE LUCIEN DECLUME, LONS-LE-SAUNIER
